

## PATENT COOPERATION TREATY

From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT

## NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

To:

Commissioner  
US Department of Commerce  
United States Patent and Trademark  
Office, PCT  
2011 South Clark Place Room  
CP2/5C24  
Arlington, VA 22202  
ETATS-UNIS D'AMERIQUE  
in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year) 14 February 2001 (14.02.01)	
International application No. PCT/JP00/04007	Applicant's or agent's file reference FTY0008-PCT
International filing date (day/month/year) 20 June 2000 (20.06.00)	Priority date (day/month/year) 21 June 1999 (21.06.99)
Applicant SAKAI, Ryo et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

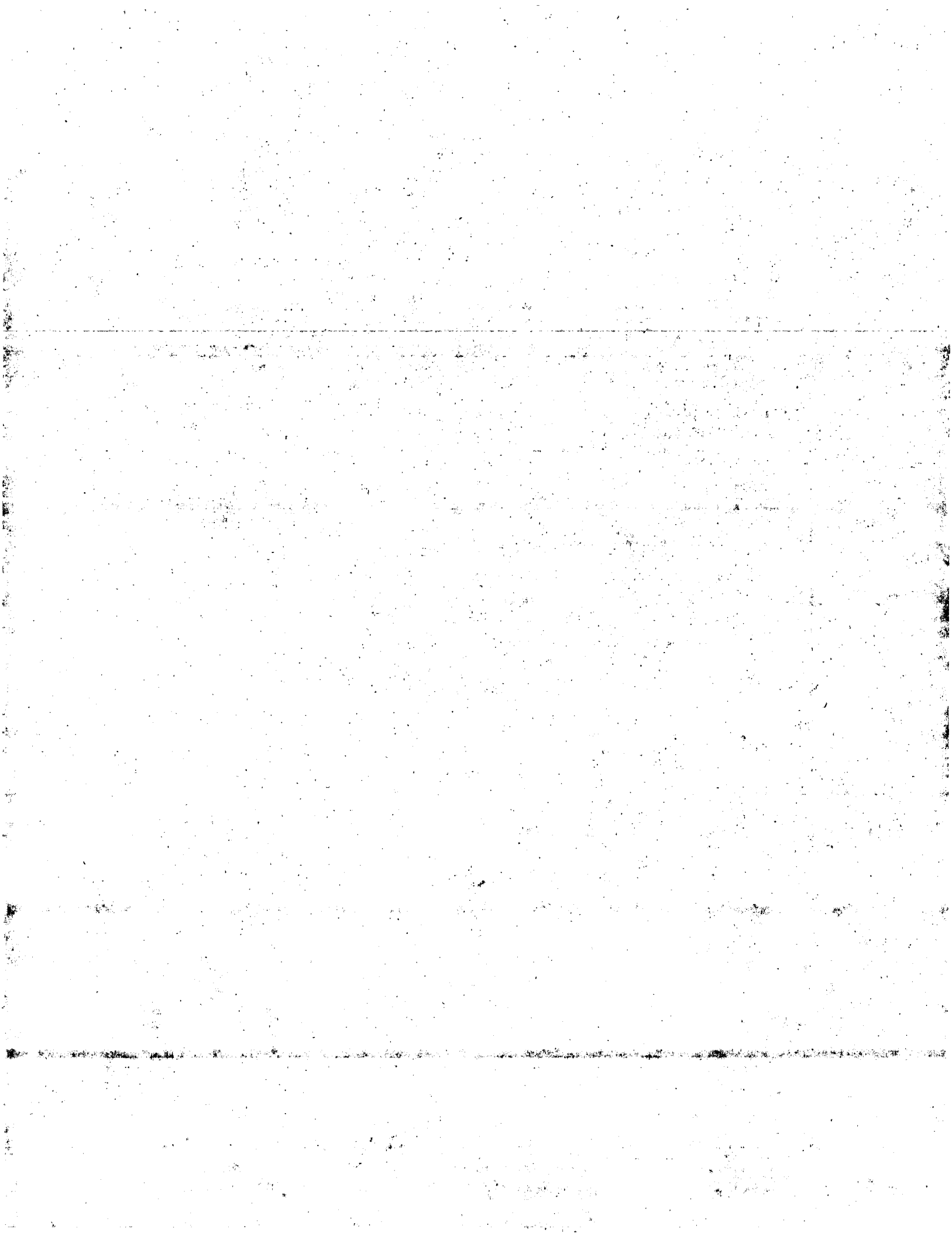
☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:  
18 December 2000 (18.12.00)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was  
☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer R. Forax Telephone No.: (41-22) 338.83.38
---	--



## PARENT COOPERATION TREATY

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

NOTIFICATION OF THE RECORDING  
OF A CHANGE(PCT Rule 92bis.1 and  
Administrative Instructions, Section 422)

To:

SUYAMA, Saichi  
Kandahigashiyama Bldg.  
1, Kandatacho 2-chome  
Chiyoda-ku, Tokyo 101-0046  
JAPON

Date of mailing (day/month/year)

07 novembre 2001 (07.11.01)

Applicant's or agent's file reference

FTY0008-PCT

## IMPORTANT NOTIFICATION

International application No.

PCT/JP00/04007

International filing date (day/month/year)

20 juin 2000 (20.06.00)

## 1. The following indications appeared on record concerning:

☒ the applicant ☐ the inventor ☐ the agent ☐ the common representative

Name and Address

KABUSHIKI KAISHA TOSHIBA  
72, Horikawa-cho, Saiwai-ku  
Kawasaki-shi, Kanagawa 212-0013  
Japan

State of Nationality

JP

State of Residence

JP

Telephone No.

03-3457-2512

Facsimile No.

03-3456-3229

Teleprinter No.

## 2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning:

☐ the person ☐ the name ☒ the address ☐ the nationality ☐ the residence

Name and Address

KABUSHIKI KAISHA TOSHIBA  
1-1, Shibaura 1-chome  
Minato-ku, Tokyo 105-8001  
Japan

State of Nationality

JP

State of Residence

JP

Telephone No.

Facsimile No.

Teleprinter No.

## 3. Further observations, if necessary:

## 4. A copy of this notification has been sent to:

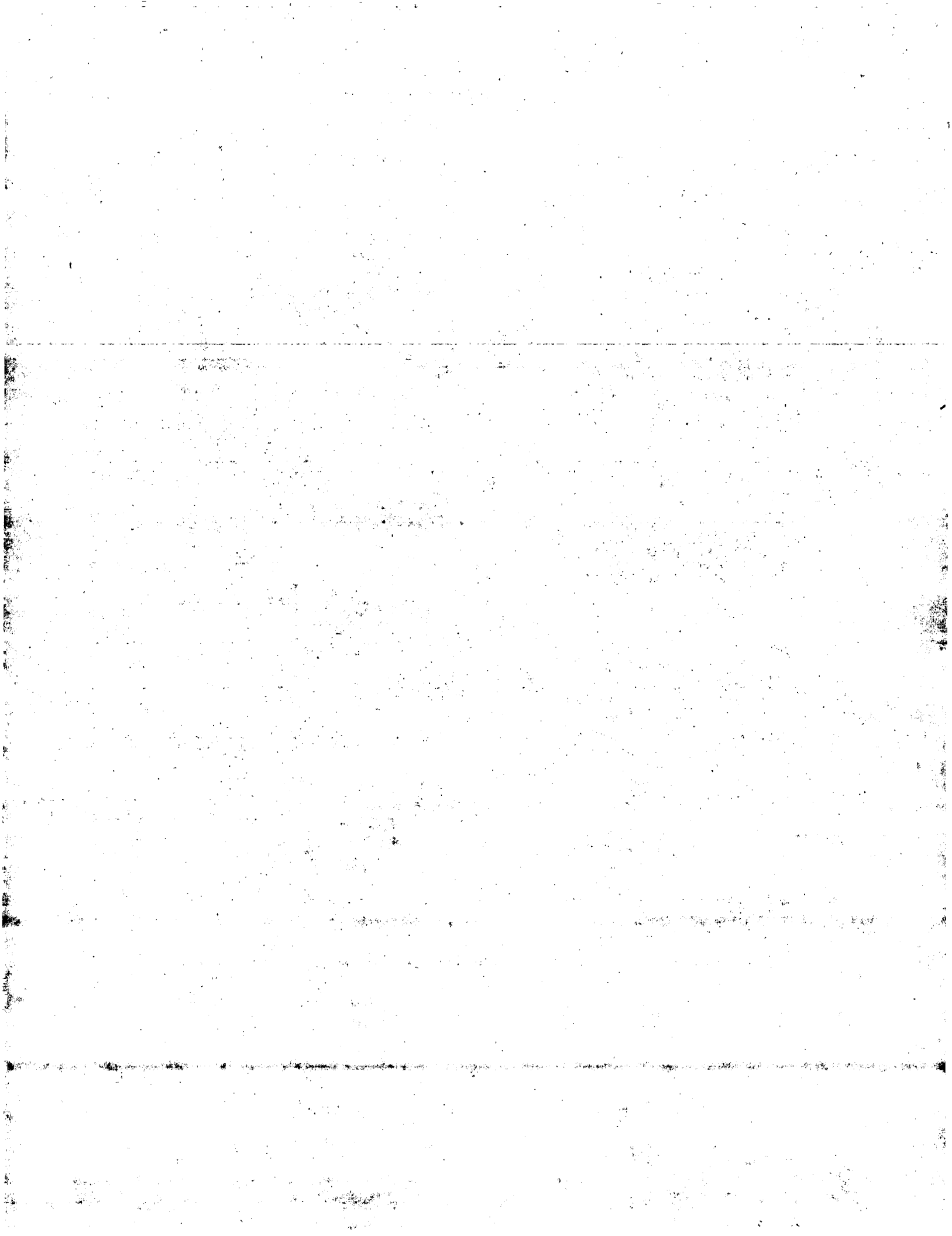
☒ the receiving Office ☐ the designated Offices concerned  
☐ the International Searching Authority ☒ the elected Offices concerned  
☐ the International Preliminary Examining Authority ☐ other:The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Authorized officer

Shinji IGARASHI

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

Telephone No.: (41-22) 338.83.38





手 続 補 正 書

(法第 1 1 条の規定による補正)



特許庁審査官

殿

1. 国際出願の表示 P C T / J P 0 0 / 0 4 0 0 7

2. 出 願 人

名 称

株式会社 東芝

KABUSHIKI KAISHA TOSHIBA

あて名

〒 2 1 2 - 0 0 1 3

日本国神奈川県川崎市幸区堀川町 7 2 番地

72, Horikawa-cho, Saiwai-ku,

Kawasaki-shi, Kanagawa 212-0013 JAPAN

国 籍

日本国 Japan

住 所

日本国 Japan

名 称

株式会社 エイ・ティーバッテリー

A&T BATTERY CORP.

あて名

〒 1 4 0 - 0 0 0 2

日本国東京都品川区東品川四丁目 1 0 番 2 7 号

10-27, Higashishinagawa 4-chome,

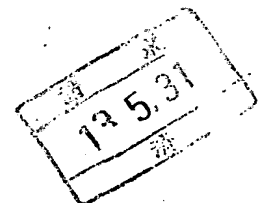
Shinagawa-ku, Tokyo 140-0002 JAPAN

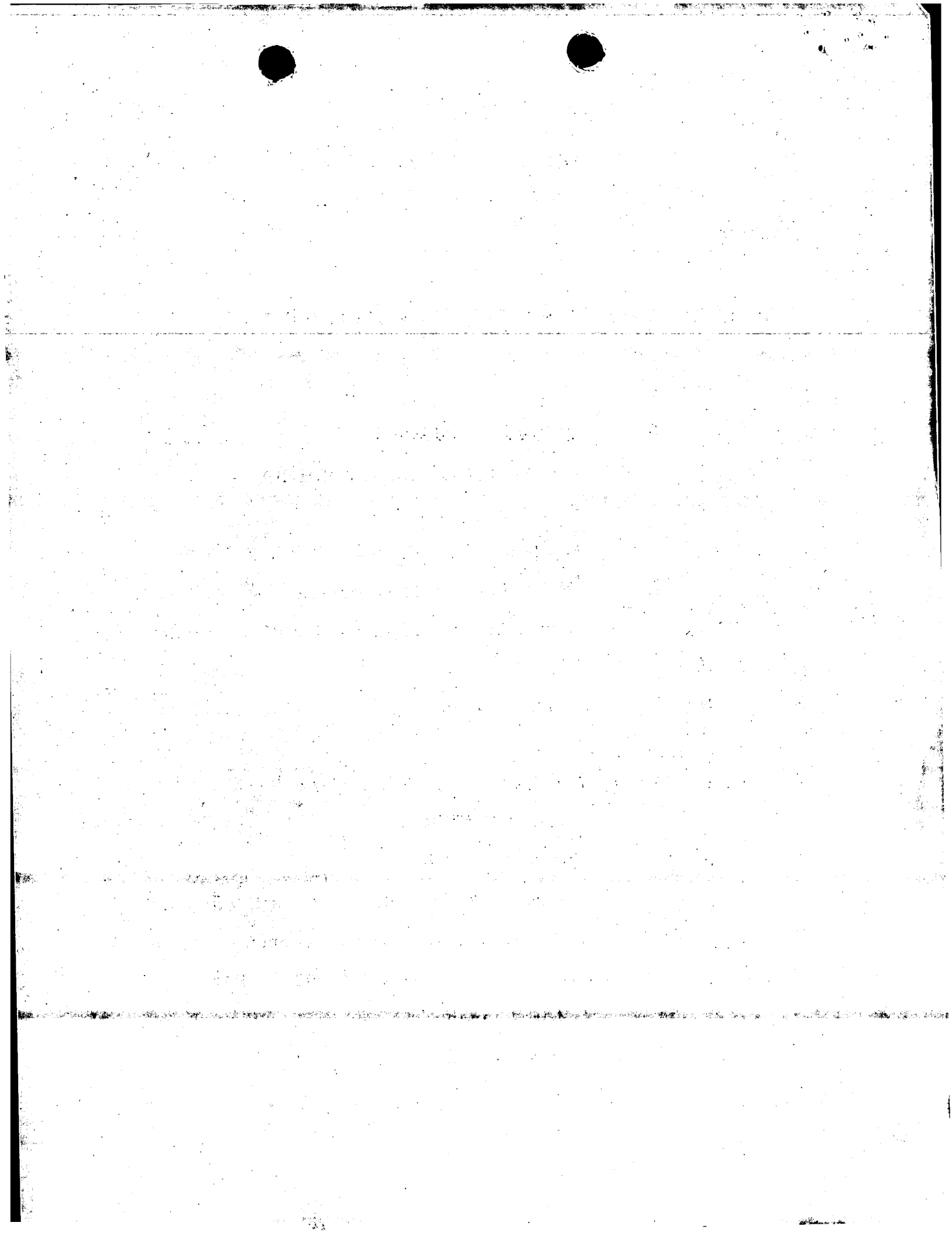
国 籍

日本国 Japan

住 所

日本国 Japan





3. 代理人

氏 名 (7784) 弁理士 須 山 佐 一

SUYAMA Saichi



あて名 〒101-0046

日本国東京都千代田区神田多町2丁目1番地

神田東山ビル 電話 03(3254)1039

Kandahigashiyama BLDG.,

1, Kandatacho 2-chome, Chiyoda-ku,

Tokyo 101-0046 JAPAN

4. 補正の対象

明細書及び請求の範囲

5. 補正の内容

(1) 第6頁第3～13行に記載の

「本発明の二次電池用正極活物質の製造方法は、二次電池用正極活物質の原料粉末を所望の比率で混合し、この混合物を焼成して粉体状の正極活物質を製造するにあたり、前記粉体状正極活物質を構成する粒子の粒径または密度に基づく抵抗力の差を利用して、前記粉体状正極活物質から粗大粒子と高密度粒子を同時に分離除去する工程を実施することを特徴としている。

本発明の二次電池用正極活物質の製造方法において、分離除去工程は例えば粉体状正極活物質の平均粒径に対して粒径が250%以上の粗大粒子、および粉体状正極活物質の平均密度に対して密度が120%以上の高密度粒子が同時に取り除かれるように実施される。また、分離除去工程は、例えば分級装置を用いて実施されるものである。」を、



「本発明の二次電池用正極活物質の製造方法は、二次電池用正極活物質の原料粉末を所望の比率で混合し、この混合物を焼成して粉体状の正極活物質を製造するにあたり、前記粉体状正極活物質を構成する粒子の粒径または密度に基づく抵抗力の差を利用して、前記粉体状正極活物質の平均粒径に対して粒径が250%以上の粗大粒子、および前記粉体状正極活物質の平均密度に対して密度が120%以上の高密度粒子が同時に取り除かれるように、前記粉体状正極活物質から粗大粒子と高密度粒子を同時に分離除去する工程を実施することを特徴としている。分離除去工程は、例えば分級装置を用いて実施されるものである。」と補正する。

(2) 第9頁第18行～第10頁第4行に記載の

「本発明の電子機能材料の再生方法は、電子部品の製造工程で生じた廃材または廃電子部品から電子機能材料を回収する工程と、前記回収した電子機能材料を精製して、粉体状の電子機能材料を再生する工程とを有する電子機能材料の再生方法において、前記回収した電子機能材料を精製する過程で、前記粉体状電子機能材料を構成する粒子の粒径および密度に基づく抵抗力の差を利用して、前記粉体状電子機能材料から粗大粒子および高密度粒子を同時に分離除去する工程を実施することを特徴としている。

本発明の電子機能材料の再生方法において、分離除去工程は例えば粉体状電子機能材料の平均粒径に対して粒径が250%以上の粗大粒子、および粉体状電子機能材料の平均密度に対して密度が120%以上の高密度粒子が同時に取り除かれるように実施される。また、分離除去工程は、例えば分級装置を用いて実施されるものである。」を、

「本発明の電子機能材料の再生方法は、電子部品の製造工程で生じた廃材または廃電子部品から電子機能材料を回収する工程と、前記回収した

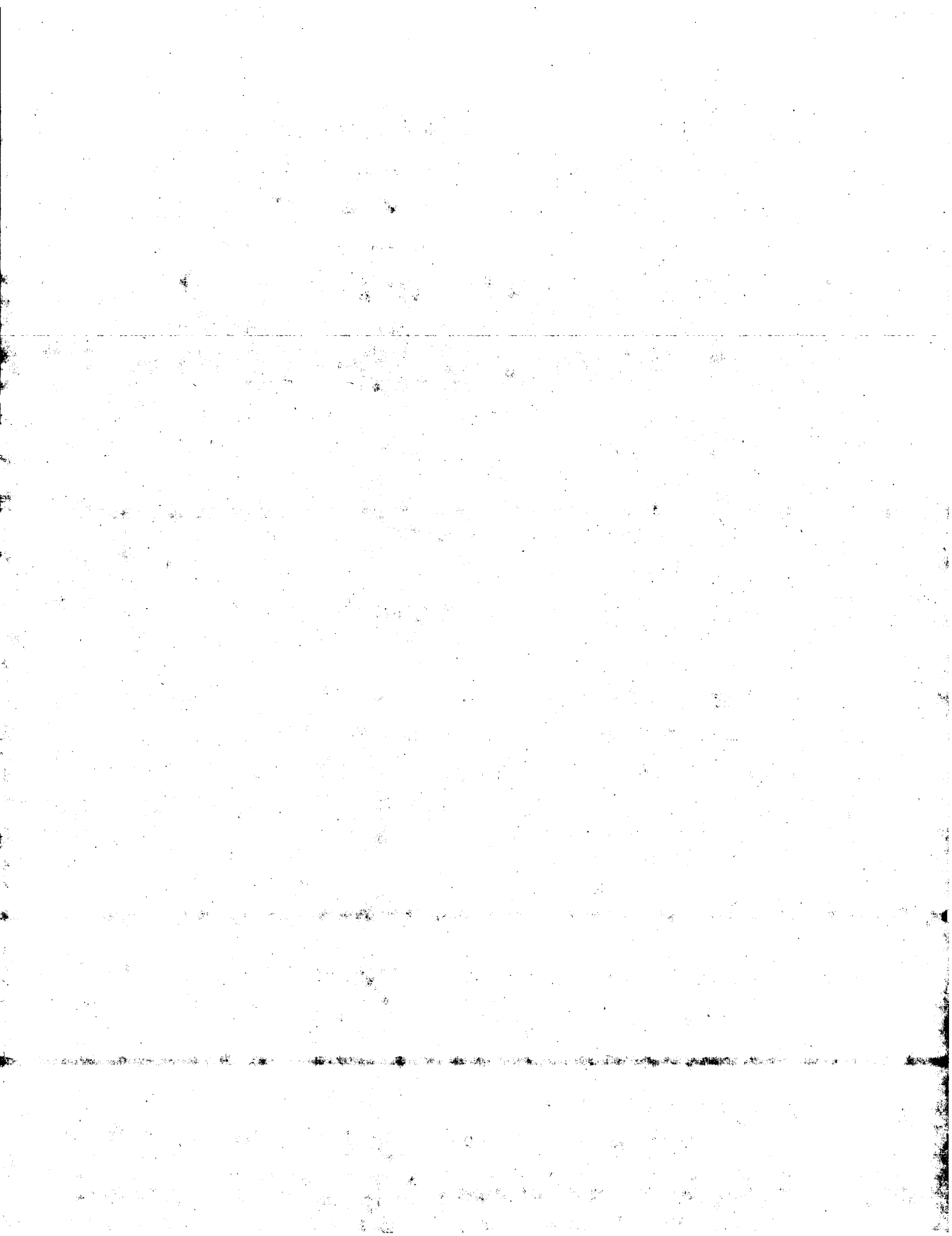


電子機能材料を精製して、粉体状の電子機能材料を再生する工程とを有する電子機能材料の再生方法において、前記回収した電子機能材料を精製する過程で、前記粉体状電子機能材料を構成する粒子の粒径および密度に基づく抵抗力の差を利用して、前記粉体状電子機能材料の平均粒径に対して粒径が250%以上の粗大粒子、および前記粉体状電子機能材料の平均密度に対して密度が120%以上の高密度粒子が同時に取り除かれるように、前記粉体状電子機能材料から粗大粒子および高密度粒子を同時に分離除去する工程を実施することを特徴としている。分離除去工程は、例えば分級装置を用いて実施されるものである。」と補正する。

(3) 第10頁第10～17行に記載の

「本発明の他の電子機能材料の再生方法は、電子部品の製造工程で生じた廃材または廃電子部品から電子機能材料を回収する工程と、前記回収した電子機能材料を精製して、粉体状の電子機能材料を再生する工程とを有する電子機能材料の再生方法において、前記回収した電子機能材料を精製する過程で、前記粉体状電子機能材料を構成する粒子の粒径または密度に基づく抵抗力の差を利用して、前記粉体状電子機能材料から微小粒子および低密度粒子を同時に分離除去する工程を実施することを特徴としている。」を、

「本発明の他の電子機能材料の再生方法は、電子部品の製造工程で生じた廃材または廃電子部品から電子機能材料を回収する工程と、前記回収した電子機能材料を精製して、粉体状の電子機能材料を再生する工程とを有する電子機能材料の再生方法において、前記回収した電子機能材料を精製する過程で、前記粉体状電子機能材料を構成する粒子の粒径または密度に基づく抵抗力の差を利用して、前記粉体状電子機能材料の平均粒径に対して粒径が50%以下の微小粒子、および前記粉体状電子機能



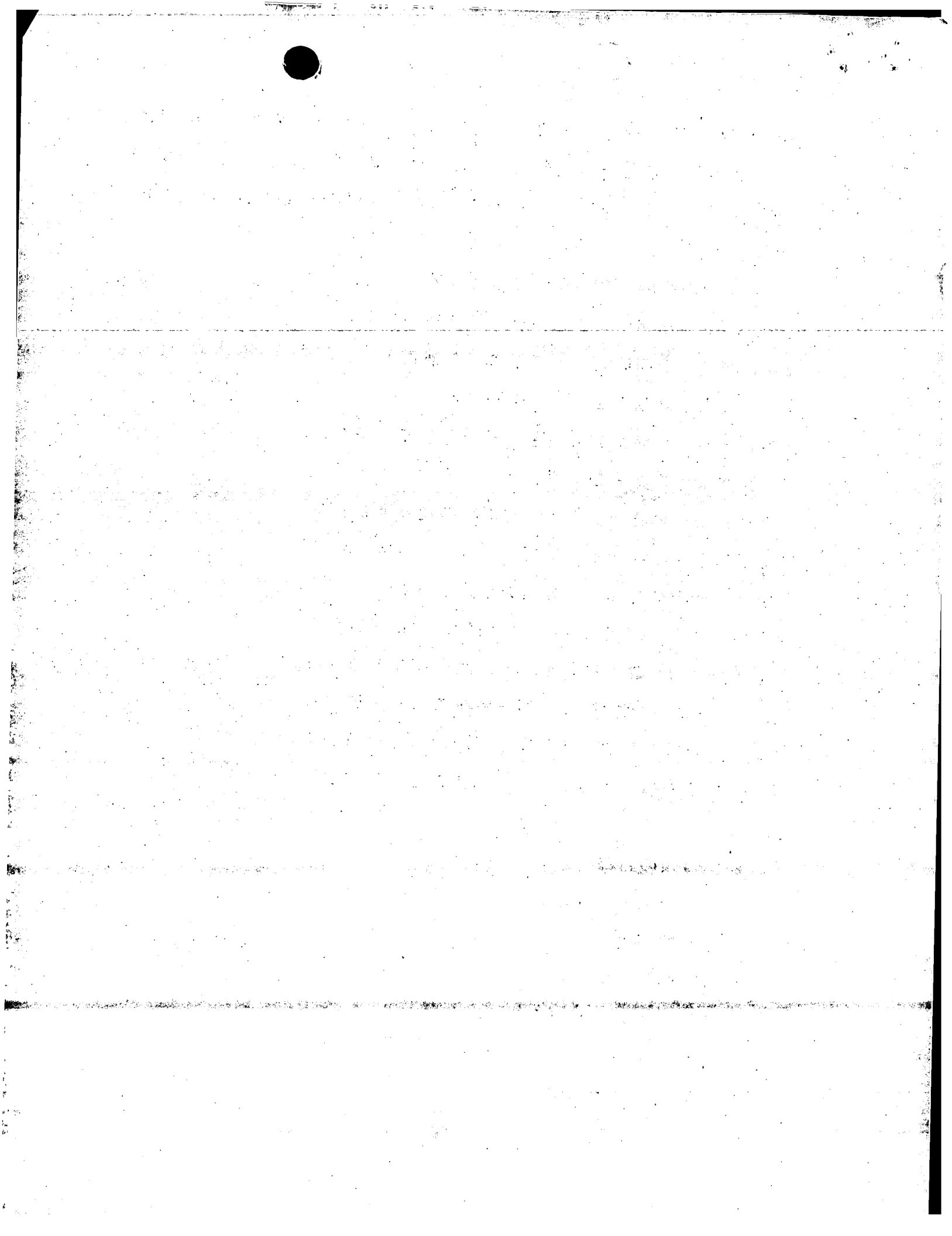


材料の平均密度に対して密度が75%以下の低密度粒子が同時に取り除かれるように、前記粉体状電子機能材料から微小粒子および低密度粒子を同時に分離除去する工程を実施することを特徴としている。」と補正する。

- (4) 請求の範囲第3項を別紙の通り補正する。
- (5) 請求の範囲第4項を別紙の通り補正する。
- (6) 請求の範囲第9項を別紙の通り補正する。
- (7) 請求の範囲第10項を削除する。
- (8) 請求の範囲第20項を別紙の通り補正する。
- (9) 請求の範囲第21項を削除する。
- (10) 請求の範囲第23項を別紙の通り補正する。
- (11) 請求の範囲第27項を別紙の通り補正する。
- (12) 請求の範囲第28項を削除する。
- (13) 請求の範囲第30項を別紙の通り追加する。
- (14) 請求の範囲第31項を別紙の通り追加する。
- (15) 請求の範囲第32項を別紙の通り追加する。
- (16) 請求の範囲第33項を別紙の通り追加する。
- (17) 請求の範囲第34項を別紙の通り追加する。

## 6. 添付書類の目録

- (1) 明細書第6頁、
- (2) 明細書第9頁、
- (3) 明細書第10頁、
- (4) 請求の範囲第50頁、
- (5) 請求の範囲第51頁、
- (6) 請求の範囲第53頁、



(7) 請求の範囲第54頁、

(8) 請求の範囲第55頁、

(9) 請求の範囲第55／1頁

以 上

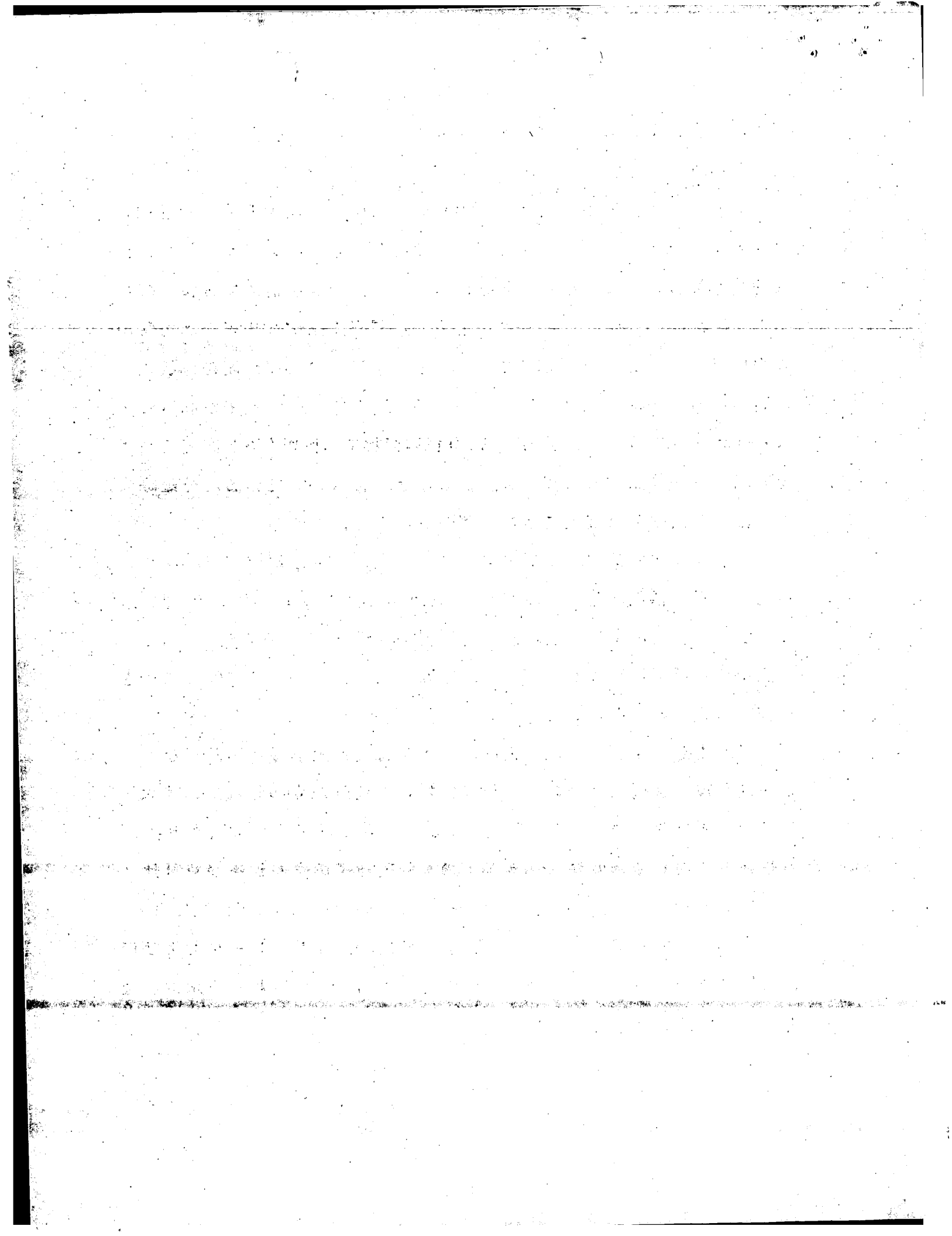


下の低密度粒子の含有比率が質量比で 1000ppm 以下であることを特徴としている。

本発明の二次電池用正極活物質の製造方法は、二次電池用正極活物質の原料粉末を所望の比率で混合し、この混合物を焼成して粉体状の正極活物質を製造するにあたり、前記粉体状正極活物質を構成する粒子の粒径または密度に基づく抵抗力の差を利用して、前記粉体状正極活物質の平均粒径に対して粒径が 250% 以上の粗大粒子、および前記粉体状正極活物質の平均密度に対して密度が 120% 以上の高密度粒子が同時に取り除かれるように、前記粉体状正極活物質から粗大粒子と高密度粒子を同時に分離除去する工程を実施することを特徴としている。分離除去工程は、例えば分級装置を用いて実施されるものである。

本発明の二次電池用正極活物質の製造方法は、さらに前記粉体状正極活物質の平均粒径に対して粒径が 50% 以下の微小粒子、および前記粉体状正極活物質の平均密度に対して密度が 75% 以下の低密度粒子を、前記粉体状正極活物質から同時に取り除くように、前記分離除去工程を実施することを特徴としている。

本発明の非水電解液二次電池は、Li 含有複合金属酸化物からなり、かつ前記複合金属酸化物の平均粒径に対して粒径が 600% 以上の粗大粒子の含有比率が体積比で 1% 以下であり、かつ前記複合金属酸化物の平均密度に対して密度が 150% 以上の高密度粒子の含有比率が質量比で 1000ppm 以下である正極活物質を含有する正極と、前記正極とセパレータを介して配置された負極と、前記正極、前記セパレータおよび前記負極を収納する電池容器と、前記電池容器内に充填された非水電解液とを具備することを特徴としている。



を同時に分離除去する工程を実施することを特徴としている。分離除去工程は、例えば分級装置を用いて実施されるものである。

本発明の電子機能材料の再生方法は、さらに前記粉体状電子機能材料の平均粒径に対して粒径が50%以下の微小粒子、および前記粉体状電子機能材料の平均密度に対して密度が75%以下の低密度粒子を、前記粉体状電子機能材料から同時に取り除くように、前記分離除去工程を実施することを特徴としている。

本発明の他の電子機能材料の再生方法は、電子部品の製造工程で生じた廃材または廃電子部品から電子機能材料を回収する工程と、前記回収した電子機能材料を精製して、粉体状の電子機能材料を再生する工程とを有する電子機能材料の再生方法において、前記回収した電子機能材料を精製する過程で、前記粉体状電子機能材料を構成する粒子の粒径または密度に基づく抵抗力の差を利用して、前記粉体状電子機能材料の平均粒径に対して粒径が50%以下の微小粒子、および前記粉体状電子機能材料の平均密度に対して密度が75%以下の低密度粒子が同時に取り除かれるように、前記粉体状電子機能材料から微小粒子および低密度粒子を同時に分離除去する工程を実施することを特徴としている。

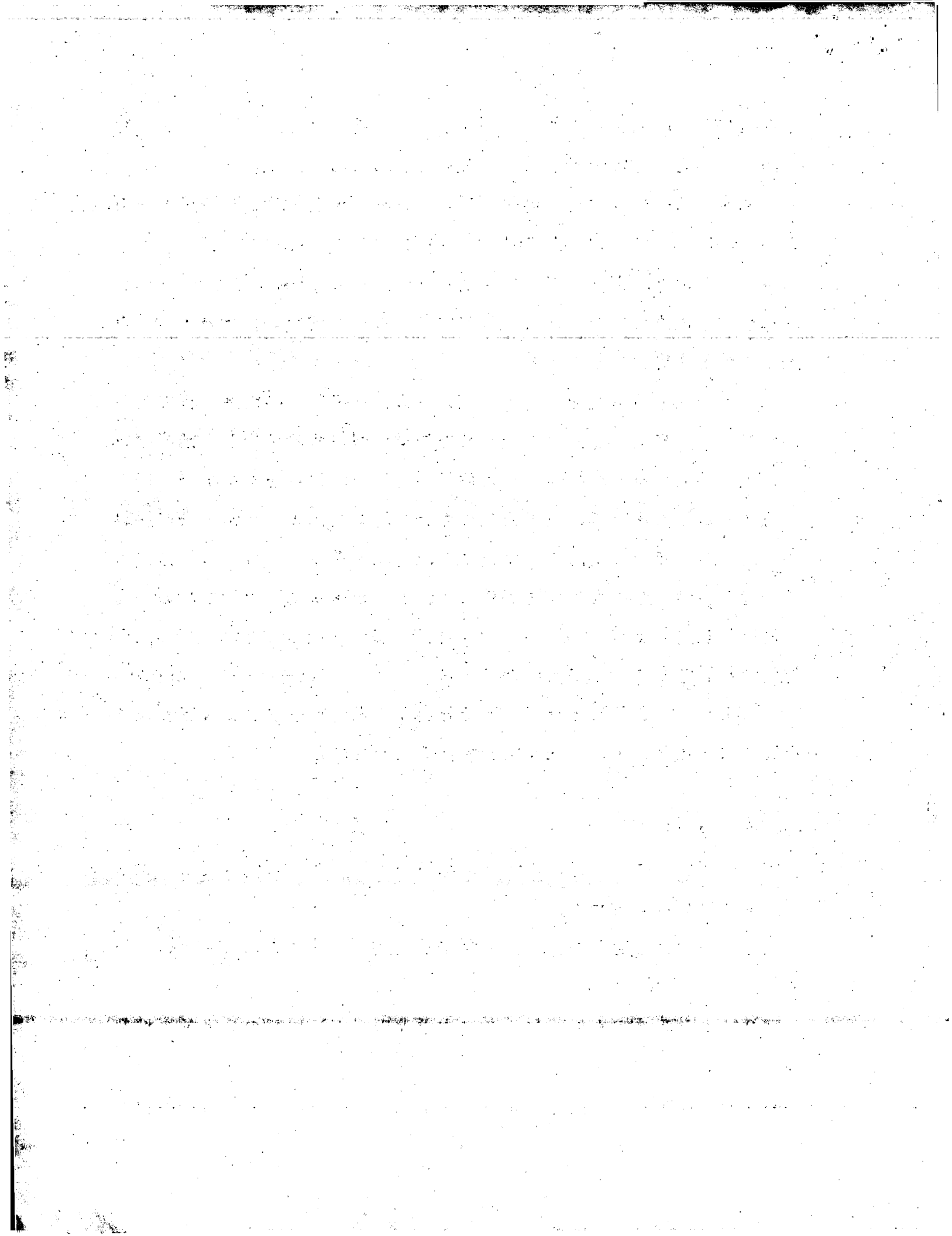
#### 図面の簡単な説明

図1は本発明の二次電池用正極活物質を適用した非水電解液二次電池の一構成例を示す断面図、

図2は乾式分級装置の分級点と粒子状金属性不純物の除去率との関係の一例を示す図、

図3は本発明の実施例1による二次電池用正極活物質の分級前の粒度分布を示す図、

図4は本発明の実施例1による二次電池用正極活物質の分級後の粒度





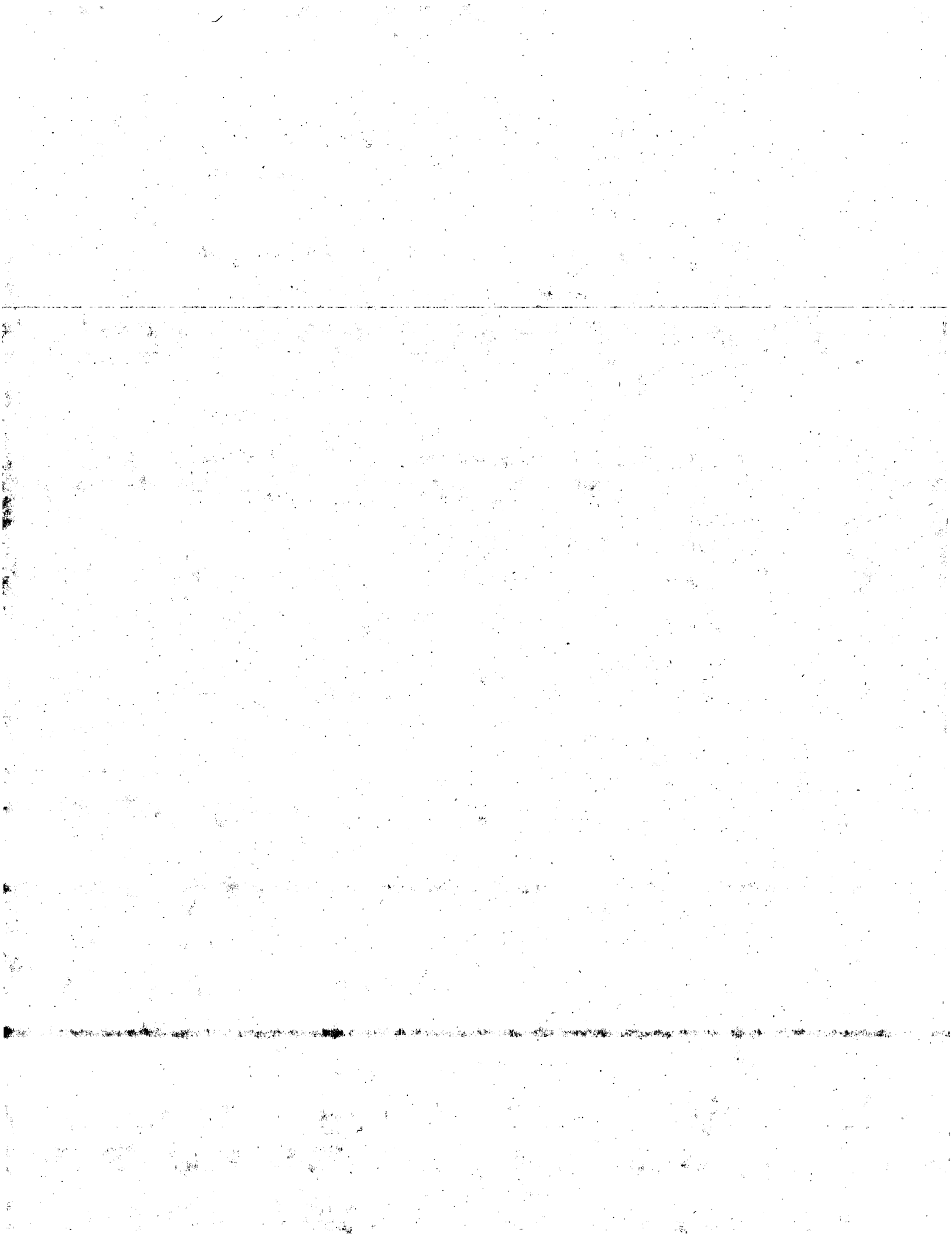
このような分離除去工程を適用したものである。

すなわち、本発明の再生電子機能材料は、電子部品の製造工程で生じた廃材または廃電子部品から回収、再生した粉体状の再生電子機能材料であって、前記粉体の平均粒径に対して粒径が600%以上の粗大粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ前記粉体の平均密度に対して密度が150%以上の高密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であることを特徴としている。

本発明の再生電子機能材料は、さらに前記粉体の平均粒径に対して粒径が15%以下の微小粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ前記粉体の平均密度に対して密度が50%以下の低密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であることを特徴としている。

本発明の他の再生電子機能材料は、電子部品の製造工程で生じた廃材または廃電子部品から回収、再生した粉体状の再生電子機能材料であって、前記粉体の平均粒径に対して粒径が15%以下の微小粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ前記粉体の平均密度に対して密度が50%以下の低密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であることを特徴としている。

本発明の電子機能材料の再生方法は、電子部品の製造工程で生じた廃材または廃電子部品から電子機能材料を回収する工程と、前記回収した電子機能材料を精製して、粉体状の電子機能材料を再生する工程とを有する電子機能材料の再生方法において、前記回収した電子機能材料を精製する過程で、前記粉体状電子機能材料を構成する粒子の粒径および密度に基づく抵抗力の差を利用して、前記粉体状電子機能材料の平均粒径に対して粒径が250%以上の粗大粒子、および前記粉体状電子機能材料の平均密度に対して密度が120%以上の高密度粒子が同時に取り除かれるように、前記粉体状電子機能材料から粗大粒子および高密度粒子



徴とする二次電池用正極活物質。

6. 請求項5記載の二次電池用正極活物質において、

前記正極活物質中の不純物元素量は、鉄が200ppm以下、銅が50ppm以下、亜鉛が30ppm以下、ニッケルが400ppm以下、マンガンが40ppm以下であることを特徴とする二次電池用正極活物質。

7. 非水電解液二次電池に用いられる金属酸化物からなる正極活物質であって、粒径が $30\mu\text{m}$ 以上の粗大粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ密度が $7\text{g}/\text{cm}^3$ 以上の高密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であることを特徴とする二次電池用正極活物質。

8. 請求項7記載の二次電池用正極活物質において、

さらに、粒径が $0.5\mu\text{m}$ 以下の微小粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、密度が $2.5\text{g}/\text{cm}^3$ 以下の低密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であることを特徴とする二次電池用正極活物質。

9. (補正後) 二次電池用正極活物質の原料粉末を所望の比率で混合し、この混合物を焼成して粉体状の正極活物質を製造するにあたり、

前記粉体状正極活物質を構成する粒子の粒径または密度に基づく抵抗力の差を利用して、前記粉体状正極活物質の平均粒径に対して粒径が250%以上の粗大粒子、および前記粉体状正極活物質の平均密度に対して密度が120%以上の高密度粒子が同時に取り除かれるように、前記粉体状正極活物質から粗大粒子と高密度粒子を同時に分離除去する工程を実施することを特徴とする二次電池用正極活物質の製造方法。

10. (削除)

11. 請求項9記載の二次電池用正極活物質の製造方法において、

前記正極活物質の凝集体、前記正極活物質と他材料との結合体および



前記正極とセパレータを介して配置された負極と、

前記正極、前記セパレータおよび前記負極を収納する電池容器と、

前記電池容器内に充填された非水電解液と

を具備することを特徴とする非水電解液二次電池。

16. 電子部品の製造工程で生じた廃材または廃電子部品から回収、再生した粉体状の再生電子機能材料であって、

前記粉体の平均粒径に対して粒径が600%以上の粗大粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ前記粉体の平均密度に対して密度が150%以上の高密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であることを特徴とする再生電子機能材料。

17. 請求項16記載の再生電子機能材料において、

さらに、前記粉体の平均粒径に対して粒径が15%以下の微小粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ前記粉体の平均密度に対して密度が50%以下の低密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であることを特徴とする再生電子機能材料。

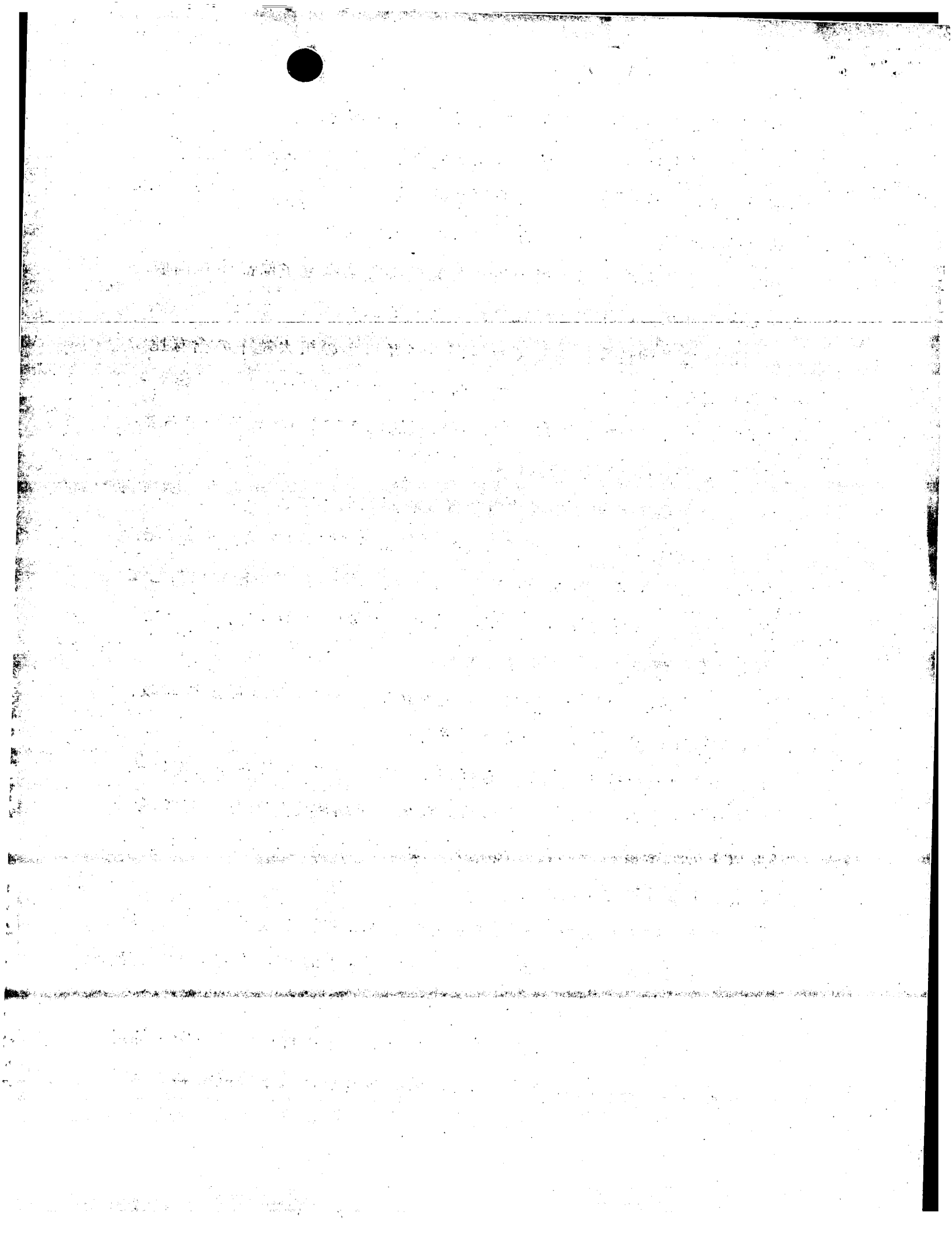
18. 電子部品の製造工程で生じた廃材または廃電子部品から回収、再生した粉体状の再生電子機能材料であって、

前記粉体の平均粒径に対して粒径が15%以下の微小粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ前記粉体の平均密度に対して密度が50%以下の低密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であることを特徴とする再生電子機能材料。

19. 請求項16記載の再生電子機能材料において、

前記再生電子機能材料は再生正極活物質または再生蛍光体であることを特徴とする再生電子機能材料。

20. (補正後) 電子部品の製造工程で生じた廃材または廃電子部品から電子機能材料を回収する工程と、前記回収した電子機能材料を精製



## 請 求 の 範 囲

1. 非水電解液二次電池に用いられる金属酸化物からなる正極活物質であって、前記金属酸化物の平均粒径に対して粒径が600%以上の粗大粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ前記金属酸化物の平均密度に対して密度が150%以上の高密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であることを特徴とする二次電池用正極活物質。

2. 請求項1記載の二次電池用正極活物質において、

前記粗大粒子は前記正極活物質の凝集体、前記正極活物質と他材料との結合体および不純物粒子から選ばれる少なくとも1種の粒子であり、かつ前記高密度粒子は粒子状の金属性不純物であることを特徴とする二次電池用正極活物質。

3. (補正後) 請求項1記載の二次電池用正極活物質において、

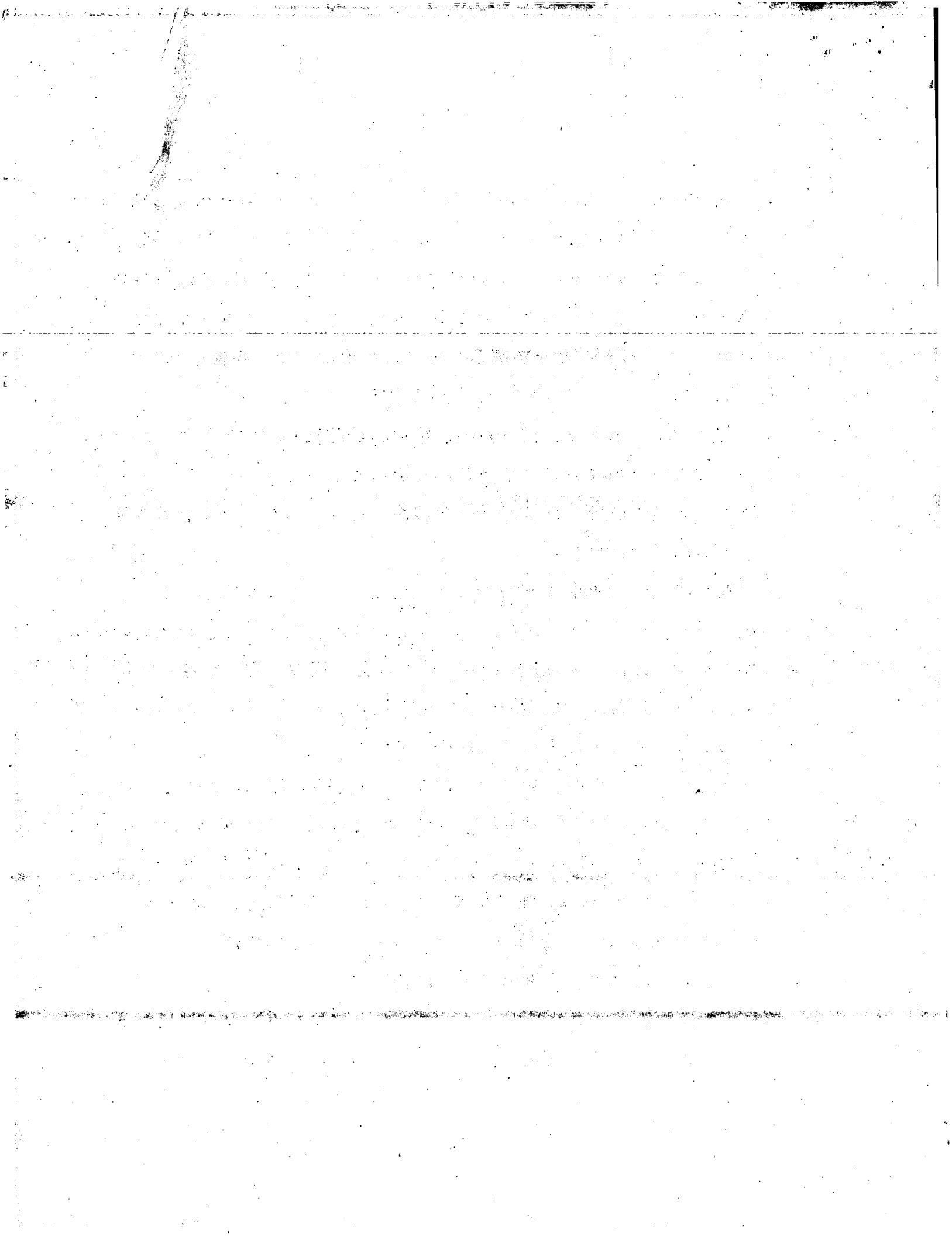
前記金属酸化物の平均粒径に対して粒径が400%以上の粗大粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ前記金属酸化物の平均密度に対して密度が150%以上の高密度粒子の含有比率が質量比で100ppm以下であることを特徴とする二次電池用正極活物質。

4. (補正後) 請求項1記載の二次電池用正極活物質において、

さらに、前記金属酸化物の平均粒径に対して粒径が15%以下の微小粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ前記金属酸化物の平均密度に対して密度が50%以下の低密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であることを特徴とする二次電池用正極活物質。

5. 請求項1記載の二次電池用正極活物質において、

前記正極活物質は、コバルト、ニッケルおよびマンガンから選ばれる少なくとも1種とリチウムとを含む複合金属酸化物からなることを特





して、粉体状の電子機能材料を再生する工程とを有する電子機能材料の再生方法において、

前記回収した電子機能材料を精製する過程で、前記粉体状電子機能材料を構成する粒子の粒径および密度に基づく抵抗力の差を利用して、前記粉体状電子機能材料の平均粒径に対して粒径が250%以上の粗大粒子、および前記粉体状電子機能材料の平均密度に対して密度が120%以上の高密度粒子が同時に取り除かれるように、前記粉体状電子機能材料から粗大粒子および高密度粒子を同時に分離除去する工程を実施することを特徴とする電子機能材料の再生方法。

#### 21. (削除)

#### 22. 請求項20記載の電子機能材料の再生方法において、

前記電子機能材料の凝集体、前記電子機能材料と他材料との結合体および不純物粒子から選ばれる少なくとも1種の前記粗大粒子と、粒子状の金属性不純物からなる前記高密度粒子を、前記分離除去工程で同時に前記粉体状電子機能材料から取り除くことを特徴とする電子機能材料の再生方法。

#### 23. (補正後) 請求項20記載の電子機能材料の再生方法において、

前記粗大粒子および前記高密度粒子の分離除去工程を、分級装置を用いて実施することを特徴とする電子機能材料の再生方法。

#### 24. 請求項20記載の電子機能材料の再生方法において、

さらに、前記粉体状電子機能材料の平均粒径に対して粒径が50%以下の微小粒子、および前記粉体状電子機能材料の平均密度に対して密度が75%以下の低密度粒子を、前記粉体状電子機能材料から同時に取り除くように、前記分離除去工程を実施することを特徴とする電子機能材料の再生方法。



25. 請求項20記載の電子機能材料の再生方法において、

二次電池の製造工程で生じた廃電極または廃二次電池から正極活物質を回収する工程と、前記回収した正極活物質を精製して、粉体状の正極活物質を再生する工程とを有することを特徴とする電子機能材料の再生方法。

26. 請求項20記載の電子機能材料の再生方法において、

電子管の製造工程で生じた余剰の蛍光体スラリーまたは廃電子管から蛍光体を回収する工程と、前記回収した蛍光体を精製して、蛍光体粉末を再生する工程とを有することを特徴とする電子機能材料の再生方法。

27. (補正後) 電子部品の製造工程で生じた廃材または廃電子部品から電子機能材料を回収する工程と、前記回収した電子機能材料を精製して、粉体状の電子機能材料を再生する工程とを有する電子機能材料の再生方法において、

前記回収した電子機能材料を精製する過程で、前記粉体状電子機能材料を構成する粒子の粒径または密度に基づく抵抗力の差を利用して、前記粉体状電子機能材料の平均粒径に対して粒径が50%以下の微小粒子、および前記粉体状電子機能材料の平均密度に対して密度が75%以下の低密度粒子が同時に取り除かれるように、前記粉体状電子機能材料から微小粒子および低密度粒子を同時に分離除去する工程を実施することを特徴とする電子機能材料の再生方法。

28. (削除)

29. 請求項27記載の電子機能材料の再生方法において、

前記微小粒子および前記低密度粒子の分離除去工程を、分級装置を用いて実施することを特徴とする電子機能材料の再生方法。

30. (追加) 請求項12記載の二次電池用正極活物質の製造方法において、



前記分級装置として、強制渦による遠心力と流体抵抗力との釣合いを

利用して分級を行う分級ロータを有する遠心力式分級装置を用い、かつ前記分級ロータの回転数と空気流量を調整することにより、前記粗大粒子および前記高密度粒子を同時に分離除去することを特徴とする二次電池用正極活物質の製造方法。

31. (追加) 請求項14記載の非水電解液二次電池において、

前記二次電池は携帯用電子機器に使用されることを特徴とする非水電解液二次電池。

32. (追加) 請求項15記載の非水電解液二次電池において、

前記二次電池は携帯用電子機器に使用されることを特徴とする非水電解液二次電池。

33. (追加) 請求項14記載の非水電解液二次電池を電源として具備することを特徴とする携帯用電子機器。

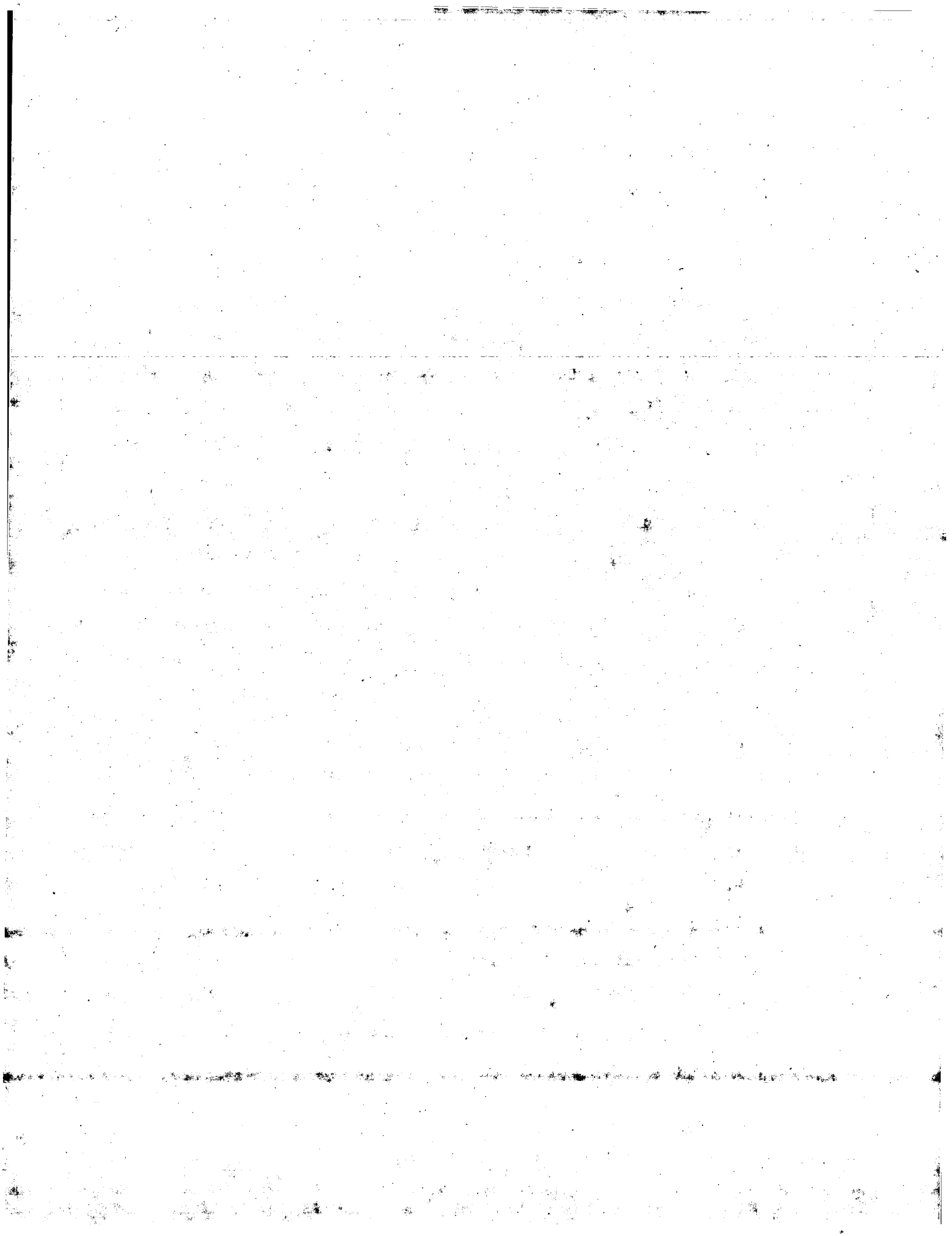
34. (追加) 請求項15記載の非水電解液二次電池を電源として具備することを特徴とする携帯用電子機器。



for use in nonaqueous electrolyte secondary batteries, in which  
a content of a coarse particle having a particle diameter of 30  
 $\mu\text{m}$  or more is 1 vol.% or less, and a content of a high density  
particle having a density of  $7 \text{ g/cm}^3$  or more is 1000 ppm or less  
5 by mass.

[0021] A positive electrode active material of the present  
invention for secondary batteries further comprises 1 vol.% or  
less of a fine particle having a particle diameter of  $0.5 \mu\text{m}$  or  
less, and 1000 ppm or less by mass of a low density particle having  
10 a density of  $2.5 \text{ g/cm}^3$  or less.

[0022] A method of manufacturing a positive electrode active  
material of the present invention for secondary batteries, in  
manufacturing a powdery positive electrode active material by  
mixing raw material powders of the positive electrode active  
15 material for secondary batteries with a desired ratio and  
sintering this mixture, by making use of the difference of  
resistance force due to the particle diameter or the density of  
the particle constituting the powdery positive electrode active  
material, the simultaneously separating and removing a coarse  
20 particle and a high density particle from the powdery positive  
electrode active material is implemented so that the coarse  
particle having a particle diameter of 250% or more relative to  
an average particle diameter of powdery positive electrode active  
material, and the high density particle having a density of 120%  
25 or more relative to an average density of the powdery positive  
electrode active material, may be simultaneously removed.





[0024] A manufacturing method of the present invention of positive electrode active material is implemented, for instance, so that a fine particle having a particle diameter of 50% or less relative to the average particle diameter of the powdery positive electrode active material, and a low density particle having a density of 75% or less relative to the average density of the powdery positive electrode active material, may be simultaneously removed from the powdery positive electrode active material.

[0025] A nonaqueous electrolyte secondary battery of the present invention comprises a positive electrode, which includes a positive electrode active material consisting essentially of a Li containing composite metal oxide powder and of which content of a coarse particle having a particle diameter of 600% or more relative to an average particle diameter of the composite metal oxide powder is 1 vol.% or less, and of which content of a high density particle having a density of 150% or more relative to an average density of the composite metal oxide powder is 1000 ppm or less by mass; a negative electrode disposed so as to face, through a separator, the positive electrode; a battery case, which accommodates the positive electrode, the separator, and the negative electrode; and a nonaqueous electrolytic solution filled in the battery case.

[0026] Another nonaqueous electrolytic solution secondary battery of the present invention comprises a positive electrode, which includes a positive electrode active material consisting



material recovered and reproduced from waste electronic components or waste material produced in the manufacturing process of the electronic components; the reproduced powdery electronic functional material contains 1% or less by volume of  
5 finer particles, of which particle sizes are 15% or less with respect to the average particle size of the powder, and 1000 ppm or less by mass of lower density particles, of which densities are 50% or less with respect to the average density of the powder.

[0036] A reproducing method of electronic functional material of the present invention includes recovering the electronic functional material from waste electronic components or waste material produced in the course of manufacturing the electronic components; and reproducing the powdery electronic functional material by refining the recovered electronic functional  
10 material; wherein in the course of refining the recovered electronic functional material, by making use of the difference of the resistance force due to the particle sizes and the densities of the particles constituting the powdery electronic functional material, the simultaneously separating and removing the coarser particles and the higher density particles from the powdery  
15 electronic functional material is implemented so that the coarser particles, of which particle sizes are 250% or more with respect to an average particle size of powdery electronic functional material, and higher density particles, of which densities are  
20 120% or more with respect to an average density of the powdery electronic functional material may be  
25 simultaneously removed.



[0038] In the reproduction method of the present invention of the electronic functional material, the separating/removing process is performed further so that the finer particles, of which particle sizes are 50% or less with respect to an average particle size of the powdery electronic functional material, and the lower density particles, of which densities are 75% or less with respect to an average density of the powdery electronic functional material may be simultaneously removed from the powdery electronic functional material.

[0039] Another reproducing method of the present invention of electronic functional material includes recovering the electronic functional material from waste electronic components or waste material produced in the course of manufacture of the electronic components: and reproducing the powdery electronic functional material, the coarser particles and the higher density particles are simultaneously separated and removed from the powdery electronic functional material.

#### Brief Description of the Drawings

[0040] Fig. 1 is a sectional view showing an example of



1. The purpose of this document is to provide information regarding the status of the project. The project is currently in the planning phase and is expected to be completed by the end of the year. The project is being managed by the project manager and is being funded by the government. The project is being implemented by the project team and is being monitored by the project manager. The project is being completed on time and within budget. The project is being completed successfully and is being used to improve the quality of the project. The project is being completed successfully and is being used to improve the quality of the project.

2. The project is currently in the planning phase and is expected to be completed by the end of the year. The project is being managed by the project manager and is being funded by the government. The project is being implemented by the project team and is being monitored by the project manager. The project is being completed on time and within budget. The project is being completed successfully and is being used to improve the quality of the project. The project is being completed successfully and is being used to improve the quality of the project.

3. The project is currently in the planning phase and is expected to be completed by the end of the year. The project is being managed by the project manager and is being funded by the government. The project is being implemented by the project team and is being monitored by the project manager. The project is being completed on time and within budget. The project is being completed successfully and is being used to improve the quality of the project. The project is being completed successfully and is being used to improve the quality of the project.

4. The project is currently in the planning phase and is expected to be completed by the end of the year. The project is being managed by the project manager and is being funded by the government. The project is being implemented by the project team and is being monitored by the project manager. The project is being completed on time and within budget. The project is being completed successfully and is being used to improve the quality of the project. The project is being completed successfully and is being used to improve the quality of the project.

5. The project is currently in the planning phase and is expected to be completed by the end of the year. The project is being managed by the project manager and is being funded by the government. The project is being implemented by the project team and is being monitored by the project manager. The project is being completed on time and within budget. The project is being completed successfully and is being used to improve the quality of the project. The project is being completed successfully and is being used to improve the quality of the project.

What is claimed is:

1. A positive electrode active material consisting essentially of a metal oxide powder for use in a nonaqueous electrolyte secondary battery, comprising:

5        1 vol.% or less of a coarse particle having a particle diameter of 600% or more relative to an average particle diameter of the metal oxide powder; and

1000 ppm or less by mass of a high density particle having a density of 150% or more relative to an average density of the  
10 metal oxide powder.

2. The positive electrode active material as set forth in claim 1:

wherein the coarse particle is at least one particle selected from an agglomeration of the positive electrode active  
15 material, a combination of the positive electrode active material and other material, and a impurity particle, and the high density particle is a powdery metallic impurity.

3. (Amended) The positive electrode active material as set forth in claim 1:

20        wherein a content of the coarse particle, of which the particle diameter is 400% or more relative to the average particle diameter of the metal oxide powder, is 1 vol.% or less, and a content of the high density particle, of which the density is 150% or more relative to the average density of the metal oxide powder,  
25 is 100 ppm or less by mass.

4. (Amended) The positive electrode active material as set forth in claim 1, further comprising:

1 vol.% or less of a fine particle having a particle diameter



[The body of the document contains several paragraphs of text that are extremely faint and illegible due to the quality of the scan. The text appears to be organized into sections, possibly separated by horizontal lines, but the specific content cannot be discerned.]



of 15% or less relative to the average particle diameter of the metal oxide powder; and

1000 ppm or less by mass of a low density particle having a density of 50% or less relative to the average density of the metal oxide powder.

5. The positive electrode active material as set forth in claim 1:

wherein the positive electrode active material is made of a composite metal oxide including lithium and at least one element selected from cobalt, nickel and manganese.

6. The positive electrode active material as set forth in claim 5:

wherein amounts of impurity elements in the positive electrode active material are 200 ppm or less for iron, 50 ppm or less for copper, 30 ppm or less for zinc, 400 ppm or less for nickel, and 40 ppm or less for manganese.

7. A positive electrode active material consisting essentially of a metal oxide powder for use in a nonaqueous electrolyte secondary battery, comprising:

1 vol.% or less of a coarse particle having a particle diameter of 30  $\mu\text{m}$  or more; and

1000 ppm or less by mass of a high density particle having a density of 7  $\text{g/cm}^3$  or more.

8. The positive electrode active material as set forth in claim 7, further comprising:

1 vol.% or less of a fine particle having a particle diameter of 0.5  $\mu\text{m}$  or less; and

1000 ppm or less by mass of a low density particle having



a density of 2.5 g/cm<sup>3</sup> or less.

9. ~~(Amended)~~ A method of manufacturing a positive electrode active material for a secondary battery, comprising:

manufacturing a powdery positive electrode active material  
5 by mixing raw material powders of the positive electrode active material for a secondary battery with a desired ratio and firing the mixture; and

separating and removing simultaneously a coarse particle and a high density particle from the powdery positive electrode active material, by making use of difference of resistance force  
10 based on a diameter or a density of particle constituting the powdery positive electrode active material, so that the coarse particle having a particle diameter of 250% or more relative to an average particle diameter of the powdery positive electrode active material, and the high density particle having a density  
15 of 120% or more relative to an average density of the powdery positive electrode active material are removed from the powdery positive electrode active material.

10. (deleted)

20 11. The method of manufacturing a positive electrode active material for a secondary battery as set forth in claim 9:

wherein the coarse particle made of at least one particle selected from an agglomeration of the positive electrode active material, a combination of the positive electrode active material  
25 and other material, and a impurity particle, and the high density particle made of a powdery metallic impurity are simultaneously removed from the powdery positive electrode active material in the separating and removing process.

[illegible]

12. The method of manufacturing a positive electrode  
active material for a secondary battery as set forth in claim 9:

5 wherein the process for separating and removing the coarse  
particle and the high density particle is implemented by use of  
a classifier.

13. The method of manufacturing a positive electrode  
active material for a secondary battery as set forth in claim 9:

10 wherein the separating and removing process is implemented  
so that a fine particle having a particle diameter of 50% or less  
relative to an average particle diameter of the powdery positive  
electrode active material, and a low density particle having a  
density of 75% or less relative to an average density of the powdery  
positive electrode active material are simultaneously removed.

14. A nonaqueous electrolyte secondary battery,  
15 comprising:

a positive electrode comprising a positive electrode active  
material consisting essentially of a Li containing composite  
metal oxide powder, the positive electrode active material  
comprising 1 vol.% or less of a coarse particle having a particle  
20 diameter of 600% or more relative to an average particle diameter  
of the composite metal oxide powder, and 1000 ppm or less by mass  
of a high density particle having a density of 150% or more relative  
to an average density of the composite metal oxide powder;

25 a negative electrode disposed so as to face the positive  
electrode through a separator;

a battery case for accommodating the positive electrode,  
the separator and the negative electrode; and

a nonaqueous electrolyte filled in the battery case.

1948

1. The first part of the report is a general introduction to the subject of the study. It discusses the importance of the problem and the objectives of the research. It also mentions the scope of the study and the methods used.

2. The second part of the report is a detailed description of the experimental work. It includes a description of the apparatus used, the procedure followed, and the results obtained. It also discusses the errors and limitations of the experiment.

3. The third part of the report is a discussion of the results. It compares the results with the theoretical predictions and with the results of other experiments. It also discusses the implications of the results and the conclusions drawn from the study.

4. The fourth part of the report is a summary of the work. It briefly reviews the main points of the report and states the conclusions. It also mentions the suggestions for further work.

5. The fifth part of the report is a list of references. It includes the names of the authors and the titles of the papers or books referred to in the report.

15. A nonaqueous electrolyte secondary battery,  
comprising:

a positive electrode comprising a positive electrode active material consisting essentially of a Li containing composite  
5 metal oxide powder, the positive electrode active material comprising 1 vol.% or less of a coarse particle having a particle diameter of 30  $\mu\text{m}$  or more, and 1000 ppm or less by mass of a high density particle having a density of 7  $\text{g}/\text{cm}^3$  or more;

10 a negative electrode disposed so as to face the positive electrode through a separator;

a battery case for accommodating the positive electrode, the separator and the negative electrode; and

a nonaqueous electrolyte filled in the battery case.

16. A reproduced electronic functional material powder  
15 recovered and reproduced from a waste electronic component or a waste material produced in the course of manufacturing an electronic component, comprising:

20 1 vol.% or less of a coarse particle having a particle diameter of 600% or more relative to an average particle diameter of the powder; and

1000 ppm or less by mass of a high density particle having a density of 150% or more relative to an average density of the powder.

25 17. The reproduced electronic functional material powder as set forth in claim 16, further comprising:

1 vol.% or less of a fine particle having a particle diameter of 15% or less relative to the average particle diameter of the powder; and

1998, 1999, 2000, 2001, 2002, 2003, 2004, 2005, 2006, 2007, 2008, 2009, 2010, 2011, 2012, 2013, 2014, 2015, 2016, 2017, 2018, 2019, 2020, 2021, 2022, 2023, 2024, 2025, 2026, 2027, 2028, 2029, 2030, 2031, 2032, 2033, 2034, 2035, 2036, 2037, 2038, 2039, 2040, 2041, 2042, 2043, 2044, 2045, 2046, 2047, 2048, 2049, 2050, 2051, 2052, 2053, 2054, 2055, 2056, 2057, 2058, 2059, 2060, 2061, 2062, 2063, 2064, 2065, 2066, 2067, 2068, 2069, 2070, 2071, 2072, 2073, 2074, 2075, 2076, 2077, 2078, 2079, 2080, 2081, 2082, 2083, 2084, 2085, 2086, 2087, 2088, 2089, 2090, 2091, 2092, 2093, 2094, 2095, 2096, 2097, 2098, 2099, 2100, 2101, 2102, 2103, 2104, 2105, 2106, 2107, 2108, 2109, 2110, 2111, 2112, 2113, 2114, 2115, 2116, 2117, 2118, 2119, 2120, 2121, 2122, 2123, 2124, 2125, 2126, 2127, 2128, 2129, 2130, 2131, 2132, 2133, 2134, 2135, 2136, 2137, 2138, 2139, 2140, 2141, 2142, 2143, 2144, 2145, 2146, 2147, 2148, 2149, 2150, 2151, 2152, 2153, 2154, 2155, 2156, 2157, 2158, 2159, 2160, 2161, 2162, 2163, 2164, 2165, 2166, 2167, 2168, 2169, 2170, 2171, 2172, 2173, 2174, 2175, 2176, 2177, 2178, 2179, 2180, 2181, 2182, 2183, 2184, 2185, 2186, 2187, 2188, 2189, 2190, 2191, 2192, 2193, 2194, 2195, 2196, 2197, 2198, 2199, 2200, 2201, 2202, 2203, 2204, 2205, 2206, 2207, 2208, 2209, 2210, 2211, 2212, 2213, 2214, 2215, 2216, 2217, 2218, 2219, 2220, 2221, 2222, 2223, 2224, 2225, 2226, 2227, 2228, 2229, 2230, 2231, 2232, 2233, 2234, 2235, 2236, 2237, 2238, 2239, 2240, 2241, 2242, 2243, 2244, 2245, 2246, 2247, 2248, 2249, 2250, 2251, 2252, 2253, 2254, 2255, 2256, 2257, 2258, 2259, 2260, 2261, 2262, 2263, 2264, 2265, 2266, 2267, 2268, 2269, 2270, 2271, 2272, 2273, 2274, 2275, 2276, 2277, 2278, 2279, 2280, 2281, 2282, 2283, 2284, 2285, 2286, 2287, 2288, 2289, 2290, 2291, 2292, 2293, 2294, 2295, 2296, 2297, 2298, 2299, 2300, 2301, 2302, 2303, 2304, 2305, 2306, 2307, 2308, 2309, 2310, 2311, 2312, 2313, 2314, 2315, 2316, 2317, 2318, 2319, 2320, 2321, 2322, 2323, 2324, 2325, 2326, 2327, 2328, 2329, 2330, 2331, 2332, 2333, 2334, 2335, 2336, 2337, 2338, 2339, 2340, 2341, 2342, 2343, 2344, 2345, 2346, 2347, 2348, 2349, 2350, 2351, 2352, 2353, 2354, 2355, 2356, 2357, 2358, 2359, 2360, 2361, 2362, 2363, 2364, 2365, 2366, 2367, 2368, 2369, 2370, 2371, 2372, 2373, 2374, 2375, 2376, 2377, 2378, 2379, 2380, 2381, 2382, 2383, 2384, 2385, 2386, 2387, 2388, 2389, 2390, 2391, 2392, 2393, 2394, 2395, 2396, 2397, 2398, 2399, 2400, 2401, 2402, 2403, 2404, 2405, 2406, 2407, 2408, 2409, 2410, 2411, 2412, 2413, 2414, 2415, 2416, 2417, 2418, 2419, 2420, 2421, 2422, 2423, 2424, 2425, 2426, 2427, 2428, 2429, 2430, 2431, 2432, 2433, 2434, 2435, 2436, 2437, 2438, 2439, 2440, 2441, 2442, 2443, 2444, 2445, 2446, 2447, 2448, 2449, 2450, 2451, 2452, 2453, 2454, 2455, 2456, 2457, 2458, 2459, 2460, 2461, 2462, 2463, 2464, 2465, 2466, 2467, 2468, 2469, 2470, 2471, 2472, 2473, 2474, 2475, 2476, 2477, 2478, 2479, 2480, 2481, 2482, 2483, 2484, 2485, 2486, 2487, 2488, 2489, 2490, 2491, 2492, 2493, 2494, 2495, 2496, 2497, 2498, 2499, 2500, 2501, 2502, 2503, 2504, 2505, 2506, 2507, 2508, 2509, 2510, 2511, 2512, 2513, 2514, 2515, 2516, 2517, 2518, 2519, 2520, 2521, 2522, 2523, 2524, 2525, 2526, 2527, 2528, 2529, 2530, 2531, 2532, 2533, 2534, 2535, 2536, 2537, 2538, 2539, 2540, 2541, 2542, 2543, 2544, 2545, 2546, 2547, 2548, 2549, 2550, 2551, 2552, 2553, 2554, 2555, 2556, 2557, 2558, 2559, 2560, 2561, 2562, 2563, 2564, 2565, 2566, 2567, 2568, 2569, 2570, 2571, 2572, 2573, 2574, 2575, 2576, 2577, 2578, 2579, 2580, 2581, 2582, 2583, 2584, 2585, 2586, 2587, 2588, 2589, 2590, 2591, 2592, 2593, 2594, 2595, 2596, 2597, 2598, 2599, 2600, 2601, 2602, 2603, 2604, 2605, 2606, 2607, 2608, 2609, 2610, 2611, 2612, 2613, 2614, 2615, 2616, 2617, 2618, 2619, 2620, 2621, 2622, 2623, 2624, 2625, 2626, 2627, 2628, 2629, 2630, 2631, 2632, 2633, 2634, 2635, 2636, 2637, 2638, 2639, 2640, 2641, 2642, 2643, 2644, 2645, 2646, 2647, 2648, 2649, 2650, 2651, 2652, 2653, 2654, 2655, 2656, 2657, 2658, 2659, 2660, 2661, 2662, 2663, 2664, 2665, 2666, 2667, 2668, 2669, 2670, 2671, 2672, 2673, 2674, 2675, 2676, 2677, 2678, 2679, 26

the 1990s, the number of people in the world who are under 15 years of age is expected to increase from 1.1 billion to 1.5 billion. The number of people aged 65 and over is expected to increase from 250 million to 450 million. The number of people aged 15 and over is expected to increase from 3.5 billion to 4.5 billion. The number of people aged 15 and over is expected to increase from 3.5 billion to 4.5 billion. The number of people aged 15 and over is expected to increase from 3.5 billion to 4.5 billion.

[illegible]

1. *Journal of Management Studies*, 1996, 33, 1, 1-14.



1000 ppm or less by mass of a low density particle having a density of 50% or less relative to the average density of the powder.

18. A reproduced electronic functional material powder recovered and reproduced from a waste electronic component or a waste material produced in the course of manufacturing an electronic component, comprising:

1 vol.% or less of a fine particle having a particle diameter of 15% or less relative to an average particle diameter of the powder; and

1000 ppm or less by mass of a low density particle having a density of 50% or less relative to an average density of the powder.

19. The reproduced electronic functional material as set forth in claim 16:

wherein the reproduced electronic functional material is a reproduced positive electrode active material or a reproduced phosphor.

20. (Amended) A method for reproducing an electronic functional material, comprising:

recovering an electronic functional material from a waste electronic component or a waste material produced in the course of manufacturing electronic component; and

reproducing an electronic functional material powder by refining the recovered electronic functional material;

wherein, in the refining the recovered electronic functional material, by making use of difference of resistance force based on a diameter or a density of particle constituting



th electronic functional material powder, simultaneously  
separating and removing a coarse particle and a high density  
particle from the electronic functional material powder, so that  
the coarse particle having a particle diameter of 250% or more  
5 relative to an average particle diameter of the electronic  
functional material powder, and the high density particle having  
a density of 120% or more relative to an average density of the  
electronic functional material powder are simultaneously  
removed.

10 21. (deleted)

22. The method for reproducing an electronic functional  
material as set forth in claim 20:

wherein the coarse particle made of at least one particle  
selected from an agglomeration of the electronic functional  
15 material, a combination of the electronic functional material and  
other material, and a impurity particle, and the high density  
particle made of a powdery metallic impurity are simultaneously  
removed from the electronic functional material powder in the  
separating and removing process.

20 23. (Amended) The method for reproducing an electronic  
functional material as set forth in claim 20:

wherein the separating and removing the coarse particle and  
the high density particle is implemented by use of a classifier.

25 24. The method for reproducing an electronic functional  
material as set forth in claim 20:

wherein the separating and removing process is performed  
so that a fine particle having a particle diameter of 50% or less  
relative to the average particle diameter of the electronic



functional material powder, and a low density particle having a density of 75% or less relative to the average density of the electronic functional material powder are simultaneously removed.

5           25. The method for reproducing an electronic functional material as set forth in claim 20, comprising:

recovering a positive electrode active material from a waste secondary battery or a waste electrode produced in the course of manufacturing secondary battery; and

10           reproducing a positive electrode active material powder by refining the recovered positive electrode active material.

26. The method for reproducing an electronic functional material as set forth in claim 20, comprising:

15           recovering a phosphor from a waste electron tube or a excess phosphor slurry produced in the course of manufacturing electron tube; and

reproducing a phosphor powder by refining the recovered phosphor.

20           27. (Amended) A method for reproducing an electronic functional material, comprising:

recovering an electronic functional material from a waste electronic component or a waste material produced in the course of manufacturing an electronic component; and

25           reproducing an electronic functional material powder by refining the recovered electronic functional material;

wherein, in the refining the recovered electronic functional material, by making use of difference of resistance force based on a diameter or a density of particle constituting



the electronic functional material powder, the process for simultaneously separating and removing a fine particle and a low density particle from the electronic functional material powder is implemented so that the fine particle having a particle diameter of 50% or less relative to an average particle diameter of the electronic functional material powder, and the low density particle having a density of 75% or less relative to an average density of the electronic functional material powder are simultaneously removed.

10           28. (deleted)

29. The method for reproducing an electronic functional material as set forth in claim 27:

wherein the process for separating and removing the fine particle and the low density particle is implemented by use of  
15 a classifier.

30. (Added) The method of manufacturing a positive electrode active material for a secondary battery as set forth in claim 12:

wherein the simultaneously separating and removing the  
20 coarse particle and the high density particle is implemented by use of a centrifugal classifier, which has a classification rotor that classifies by making use of a balance between centrifugal force due to forced vortex and fluid resistance, and by adjusting the number of revolutions and an amount of airflow of the  
25 classification rotor.

31. (Added) The nonaqueous electrolyte secondary battery as set forth in claim 14:

wherein the secondary battery is used for a portable





electronic device.

32. (Added) The nonaqueous electrolyte secondary battery

as set forth in claim 15:

wherein the secondary battery is used for a portable

5 electronic device.

33. (Added) A portable electronic device, comprising:

a nonaqueous electrolyte secondary battery set forth in  
claim 14 as a power source.

34. (Added) A portable electronic device, comprising:

10 a nonaqueous electrolyte secondary battery set forth in  
claim 15 as a power source.





(43) 国際公開日  
2000 年 12 月 28 日 (28.12.2000)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 00/79621 A1

(51) 国際特許分類: H01M 4/58, 10/40, 10/54

(21) 国際出願番号: PCT/JP00/04007

(22) 国際出願日: 2000 年 6 月 20 日 (20.06.2000)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:  
特願平 11/174758 1999 年 6 月 21 日 (21.06.1999) JP  
特願平 11/229162 1999 年 8 月 13 日 (13.08.1999) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 株式会社 東芝 (KABUSHIKI KAISHA TOSHIBA) [JP/JP]; 〒212-0013 神奈川県川崎市幸区堀川町 72 番地 Kanagawa (JP).

(71) 出願人 (日本、韓国についてのみ): 株式会社 エイ・ティー・バッテリー (A&T BATTERY CORP.) [JP/JP]; 〒140-0002 東京都品川区東品川四丁目 10 番 27 号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 酒井 亮 (SAKAI,

Ryo) [JP/JP]; 〒234-0054 神奈川県横浜市港南区港南台 9 丁目 14-7-203 Kanagawa (JP). 白川 康博 (SHIRAKAWA, Yasuhiro) [JP/JP]; 〒231-0801 神奈川県横浜市中区新山下 3 丁目 15-3-314 Kanagawa (JP). 居安 巨太郎 (IYASU, Kotaro) [JP/JP]; 〒183-0052 東京都府中市新町 1 丁目 77-28 Tokyo (JP). 鈴木 信和 (SUZUKI, Nobukazu) [JP/JP]; 〒143-0014 東京都大田区大森中 2 丁目 8-12 Tokyo (JP). 三井 久安 (MITSUI, Hisayasu) [JP/JP]; 〒226-0003 神奈川県横浜市緑区鵜居 1-15-1-202 Kanagawa (JP).

(74) 代理人: 須山 佐一 (SUYAMA, Saichi); 〒101-0046 東京都千代田区神田多町 2 丁目 1 番地 神田東山ビル Tokyo (JP).

(81) 指定国 (国内): CA, CN, JP, KR, US.

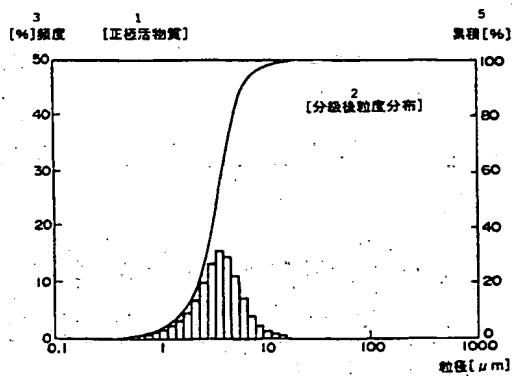
(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

添付公開書類:  
— 国際調査報告書

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

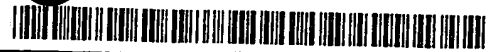
(54) Title: ACTIVE MATERIAL FOR ANODE OF SECONDARY CELL AND METHOD FOR PRODUCTION THEREOF AND NON-AQUEOUS ELECTROLYTE SECONDARY CELL, AND RECYCLED ELECTRONIC FUNCTIONAL MATERIAL AND METHOD FOR RECYCLING ELECTRONIC FUNCTIONAL MATERIAL

(54) 発明の名称: 二次電池用正極活物質およびその製造方法とそれを用いた非水電解液二次電池、ならびに再生電子機能材料と電子機能材料の再生方法



1...[ACTIVE MATERIAL FOR ANODE]  
2...[PARTICLE SIZE DISTRIBUTION]  
3...[%] FREQUENCY  
4...PARTICLE DIAMETER [μm]  
5...ACCUMULATIVE [%]

(57) Abstract: An active material for an anode comprising a metal oxide for use in a non-aqueous electrode secondary cell, characterized in that the metal oxide contains coarse particles, which have a particle diameter of 600 % or more relative to an average particle diameter thereof, in a content of 1 volume % or less, and contains high density particles, which have a density of 150 % relative to an average density thereof, in a content of 1000 mass ppm or less. The active material can be used for enhancing the performance of a cell and improving the yield of production of a cell.



---

(57) 要約:

本発明は、非水電解液二次電池に用いられる金属酸化物からなる正極活物質に関する。

金属酸化物の平均粒径に対して粒径が600%以上の粗大粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ金属酸化物の平均密度に対して密度が150%以上の高密度粒子の含有比率が質量比で1000 ppm以下にすることにより、電池性能や製造歩留まりを高めることができる。

## 明 細 書

二次電池用正極活物質およびその製造方法と

それを用いた非水電解液二次電池、ならびに

再生電子機能材料と電子機能材料の再生方法

## 技術分野

本発明は、二次電池用正極活物質およびその製造方法とそれを用いた非水電解液二次電池、ならびに再生電子機能材料と電子機能材料の再生方法に関する。

## 背景技術

近年、ノート型パソコン、携帯型情報端末（PDA）、携帯電話、ビデオカメラなどの携帯用電子機器が急速に普及している。それに伴って、携帯用電子機器の電源として用いられている二次電池には、小型・高容量化、高サイクル寿命化などが強く要求されている。

このような要求を満たす二次電池としては、例えばリチウム塩を含む非水電解液を使用したリチウムイオン二次電池が知られている。リチウムイオン二次電池では、 $\text{LiCoO}_2$ 、 $\text{LiNiO}_2$ 、 $\text{LiMn}_2\text{O}_4$ などのLi含有遷移金属複合酸化物が正極活物質として用いられている。負極には炭素系の材料が用いられ、かつ非水溶媒中に $\text{LiPF}_6$ や $\text{LiBF}_4$ などのリチウム塩を溶解した非水電解液が用いられている。

リチウムイオン二次電池は、リチウム金属を用いた二次電池に比べて安全性の点で格段に優れており、また単セル当たりの電圧が高く、高エネルギー密度が得られるというような特徴を有している。このようなことから、リチウムイオン二次電池は携帯用電子機器の電源などとして多量に使用されている。

ところで、 $\text{LiCoO}_2$ 、 $\text{LiNiO}_2$ などの正極活物質は、通常、酸化コバルトや酸化ニッケルと炭酸リチウムとの混合物を大気中にて900℃程度の温度で焼成して複合酸化物化することにより得ている。焼成により得た複合酸化物は数 $\mu\text{m}$ ～数10 $\mu\text{m}$ 程度の粒径に粉碎された後、導電剤および結着剤と共に適当な溶媒に懸濁させてスラリー化される。このスラリーを集電体（金属箔）上に塗布、乾燥して薄板状にすることによって、正極が作製される。

しかしながら、上述したような従来の正極を用いたリチウムイオン二次電池は、初期充電時に電圧低下不良が生じやすいという問題を有しており、これにより製造歩留りの低下や電池性能の低下などを招いている。さらに、二次電池の製造歩留りに関しては、正極スラリーを集電体上に塗布する際の日詰まりや集電体（金属箔）の破損なども低下要因になっている。

上記したような現象について検討したところ、従来の製造方法により作製した正極活物質中には、粒子状の金属不純物や凝集粒子などが混入していることが多く、これらが問題を引き起こしていることが判明した。金属不純物粒子や凝集粒子などの混入量は僅かであることから、従来の製造工程では見逃されていたものである。さらに、粒子状の不純物を取り除く方法としては篩分けが一般的であるが、本来の活物質粒子との粒径差が小さい金属不純物粒子や凝集粒子などは、篩分けでは有効に除去することができない。

このようなことから、二次電池用正極活物質においては、電池性能や製造歩留りを低下させる要因を排除することが強く求められている。また、不純物粒子や凝集粒子などは、通常の二次電池用正極活物質に限らず、廃電極などから物理的に回収、再生した再生正極活物質においても問題を生じさせている。

すなわち、近年の資源の枯渇化や環境汚染などに関連して、電器製品のリサイクルへの要求が高まっている。各種電器機器に使用されている電子機能材料には、一般的に高価な金属材料が用いられているため、以前より回収の必要性が論じられており、また実際に回収、再使用することが試みられている。

リチウムイオン電池などの二次電池の製造工程においては、条件だしや規定サイズへの裁断などによって、正極活物質が付着した廃電極が大量に発生する。このような廃電極からは、それを溶かしてCoを回収および精製し、一旦原料の $\text{Co}_3\text{O}_4$ などの形にした後、再度 $\text{LiCoO}_2$ などを合成することによって、正極活物質を再生している。

上述したような方法は、回収された廃材を合成前の原料まで化学的に変化させることから、ここでは化学再生と呼ぶ。この方法では、再利用しようとする電子機能材料を原料から再度合成しなければならず、再生コストが高くなるという問題がある。一方、原料の分離や再度の合成を行うことなく、電子機能材料を再生する試みがなされている。

二次電池の廃電極に関しては、 $\text{LiCoO}_2$ などの活物質を直接回収する方法が提案されている（特開平 10-8150 号公報参照）。具体的には正極材料が塗布されたAl箔（廃電極）を、Alが溶解せずにかつ $\text{LiCoO}_2$ 分解しない温度で熱処理することによって、Al箔から正極材料を剥離させると共に、導電剤や結合剤などの成分を分解除去する。これによって、 $\text{LiCoO}_2$ などの正極活物質を直接回収する。

このような回収、再生方法を、合成前の原料まで化学的に変化させて回収する化学再生と区別するために、ここでは物理再生と呼ぶ。物理再生は化学再生に比べて、電子機能材料の再生に要する処理コストが低いという利点があり、実用上極めて有利である。

一般的な物理再生工程としては、まず各種電子部品や電子機器の廃材

から目的とする粉状、スラリー状、塗膜状などの電子機能材料を回収する。再生目的の電子機能材料が塗膜状である場合には、それを基板などから剥がしとる。次いで、電子機能材料を剥がしとった基板などの大きな異物を分離除去し、さらに洗浄で除去可能な異物や不純物を除去する。必要に応じて熱処理や酸もしくはアルカリ処理などを施し、これらの処理で除去可能な異物や不純物を除去する。さらに、篩分けや乾燥などを施すことによって、合成処理を行うことなく粉体状の再生電子機能材料を得ている。

物理再生においては、各種の処理工程を経ても電子機能材料の特性を劣化させないことが必要とされる。しかし、実際には分離が難しい異物の混入、剥離工程や熱処理工程での熱による脆化に起因する微粉化、結合剤成分などの残留による凝集粗大塊の混入などによって、再生電子機能材料の特性が劣化してしまうことが問題になっている。二次電池用正極活物質の物理再生においては、篩分けなどでは分離が困難な不純物が混入するおそれが大きく、また活物質の凝集体なども多く存在する。このような再生正極活物質を使用して二次電池を作製すると、電池性能や製造歩留りが低下するという問題が生じてしまう。

このようなことから、物理再生により得られる電子機能材料（再生材料）の特性劣化を抑制することによって、物理再生の利用性を高めることが望まれている。なお、電子機能材料の物理再生は、二次電池の正極活物質にかぎらず、陰極線管や蛍光ランプの作製に用いられる蛍光体スラリーから蛍光体を回収して、再利用する場合などにも適用されている。蛍光体の物理再生においても、不純物粒子や凝集粒子などが再生蛍光体の特性や製造歩留りの低下要因となっている。

本発明の目的は、電池性能や製造歩留りを低下させる要因を排除することによって、非水電解液二次電池の製造歩留りを高めることを可能に



すると共に、電池性能の向上を図った二次電池用正極活物質とその製造方法、さらにはそのような正極活物質を用いた非水電解液二次電池を提供することにある。本発明の他の目的は、各種の回収、再生処理工程により混入する異物、不純物、微粉、凝集粗大塊などを確実にかつ工業的に分離除去することを可能にすることによって、特性劣化を抑制した再生電子機能材料と電子機能材料の再生方法を提供することにある。

#### 発明の開示

本発明の二次電池用正極活物質は、非水電解液二次電池に用いられる金属酸化物からなる正極活物質であって、前記金属酸化物の平均粒径に対して粒径が 600% 以上の粗大粒子の含有比率が体積比で 1% 以下であり、かつ前記金属酸化物の平均密度に対して密度が 150% 以上の高密度粒子の含有比率が質量比で 1000ppm 以下であることを特徴としている。

本発明の二次電池用正極活物質は、さらに前記金属酸化物の平均粒径に対して粒径が 15% 以下の微小粒子の含有比率が体積比で 1% 以下であり、かつ前記金属酸化物の平均密度に対して密度が 50% 以下の低密度粒子の含有比率が質量比で 1000ppm 以下であることを特徴としている。

本発明の他の二次電池用正極活物質は、非水電解液二次電池に用いられる金属酸化物からなる正極活物質であって、粒径が  $30\mu\text{m}$  以上の粗大粒子の含有比率が体積比で 1% 以下であり、かつ密度が  $7\text{g}/\text{cm}^3$  以上の高密度粒子の含有比率が質量比で 1000ppm 以下であることを特徴としている。

本発明の他の二次電池用正極活物質は、さらに粒径が  $0.5\mu\text{m}$  以下の微小粒子の含有比率が体積比で 1% 以下であり、密度が  $2.5\text{g}/\text{cm}^3$  以

下の低密度粒子の含有比率が質量比で 1000ppm 以下であることを特徴としている。

3 本発明の二次電池用正極活物質の製造方法は、二次電池用正極活物質の原料粉末を所望の比率で混合し、この混合物を焼成して粉体状の正極活物質を製造するにあたり、前記粉体状正極活物質を構成する粒子の粒径または密度に基づく抵抗力の差を利用して、前記粉体状正極活物質から粗大粒子と高密度粒子を同時に分離除去する工程を実施することを特徴としている。

5 本発明の二次電池用正極活物質の製造方法において、分離除去工程は例えば粉体状正極活物質の平均粒径に対して粒径が 250% 以上の粗大粒子、および粉体状正極活物質の平均密度に対して密度が 120% 以上の高密度粒子が同時に取り除かれるように実施される。また、分離除去工程は、例えば分級装置を用いて実施されるものである。

13 本発明の二次電池用正極活物質の製造方法は、さらに前記粉体状正極活物質の平均粒径に対して粒径が 50% 以下の微小粒子、および前記粉体状正極活物質の平均密度に対して密度が 75% 以下の低密度粒子を、前記粉体状正極活物質から同時に取り除くように、前記分離除去工程を実施することを特徴としている。

本発明の非水電解液二次電池は、Li 含有複合金属酸化物からなり、かつ前記複合金属酸化物の平均粒径に対して粒径が 600% 以上の粗大粒子の含有比率が体積比で 1% 以下であり、かつ前記複合金属酸化物の平均密度に対して密度が 150% 以上の高密度粒子の含有比率が質量比で 1000ppm 以下である正極活物質を含有する正極と、前記正極とセパレータを介して配置された負極と、前記正極、前記セパレータおよび前記負極を収納する電池容器と、前記電池容器内に充填された非水電解液とを具備することを特徴としている。

本発明の他の非水電解液二次電池は、Li含有複合金属酸化物からなり、かつ粒径が $30\mu\text{m}$ 以上の粗大粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ密度が $7\text{g}/\text{cm}^3$ 以上の高密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下である正極活物質を含有する正極と、前記正極とセパレータを介して配置された負極と、前記正極、前記セパレータおよび前記負極を収納する電池容器と、前記電池容器内に充填された非水電解液とを具備することを特徴としている。

前述したように、二次電池用正極活物質には粒子状の金属不純物や凝集粒子などが混入おり、これらが問題を引き起こしている。特に、粒径の大きい粒子状の金属不純物のような高密度粒子は、二次電池を初期充電した際に高い正極電位により溶出し、溶出した金属イオンが負極側で還元されて析出することによって、マイクロショートを引き起こすことになる。また、凝集粒子などの粗大粒子は、正極作製時の塗膜工程で塗工ヘッドと基板間に滞留してしまったり、また集電体である金属箔に破損などが生じさせる。さらに、微小粒子や低密度粒子は電池性能の低下要因となる。

上述した粗大粒子や微小粒子を取り除く方法としては、篩分け（湿式または乾式）が一般的であるが、正極活物質は粒径が数 $\mu\text{m}$ から数10 $\mu\text{m}$ 程度と小さいため、乾式の篩分けでは目詰まりがすぐに起こってしまい、到底工業的に利用することはできない。一方、湿式篩によれば目詰まりの問題は解消できるものの、凝集粒子などの粗大粒子は本来の正極活物質との粒径差が小さいことから、通常の湿式篩では十分な分離精度を得ることができない。加えて、篩分けでは粒子状の金属不純物などを取り除くことはできない。

そこで、本発明では二次電池用正極活物質を構成する粒子の粒径および密度に基づく抵抗力の差を利用して、正極活物質から粗大粒子と高密

度粒子を同時に分離除去する工程を実施している。この分離除去工程では、さらに微小粒子と低密度粒子を分離除去することもできる。すなわち、粒子の重力、慣性力、遠心力などの物理力に対する抵抗力は、その粒径や密度によって異なる。従って、このような抵抗力の違いを利用することにより、粗大粒子と高密度粒子、さらに微小粒子と低密度粒子を容易にかつ精度よく分離除去することができる。

上記した分離除去工程は、各種の分級装置を使用して実施することができる。例えば、遠心力式の乾式分級装置では、粒子の半径および密度に基づいて、細かく分級点を設定することができるため、二次電池用正極活物質との粒径差が小さい凝集粒子などの粗大粒子や粒子状の金属不純物のような高密度粒子についても、高精度に分離除去することができる。また、微小粒子や低密度粒子についても同様である。

上述したような分離除去工程を実施することによって、粗大粒子と高密度粒子の含有比率を同時に低減した二次電池用正極活物質を再現性よく得ることができる。そして、このような二次電池用正極活物質を用いることによって、高密度粒子などに起因する二次電池のマイクロショートや粗大粒子などに起因する正極作製時の塗膜工程における不良発生などを抑制することができる。従って、電池性能に優れ、かつ製造歩留りが高い二次電池を提供することが可能となる。

さらに、物理再生により電子機能材料を再生する場合においても、回収、再生処理工程などで異物、不純物、凝集塊のような粗大粒子や高密度粒子が混入する。これらは再生電子機能材料の特性を低下させる原因になっている。このような再生電子機能材料中に混入した粗大粒子や高密度粒子、さらに微小粒子や低密度粒子の除去に対しても、上述した粒子の粒径および密度に基づく抵抗力の差を利用した分離除去工程は有効である。本発明の再生電子機能材料および電子機能材料の再生方法は、

このような分離除去工程を適用したものである。

すなわち、本発明の再生電子機能材料は、電子部品の製造工程で生じた廃材または廃電子部品から回収、再生した粉体状の再生電子機能材料であって、前記粉体の平均粒径に対して粒径が 600% 以上の粗大粒子の含有比率が体積比で 1% 以下であり、かつ前記粉体の平均密度に対して密度が 150% 以上の高密度粒子の含有比率が質量比で 1000ppm 以下であることを特徴としている。

本発明の再生電子機能材料は、さらに前記粉体の平均粒径に対して粒径が 15% 以下の微小粒子の含有比率が体積比で 1% 以下であり、かつ前記粉体の平均密度に対して密度が 50% 以下の低密度粒子の含有比率が質量比で 1000ppm 以下であることを特徴としている。

本発明の他の再生電子機能材料は、電子部品の製造工程で生じた廃材または廃電子部品から回収、再生した粉体状の再生電子機能材料であって、前記粉体の平均粒径に対して粒径が 15% 以下の微小粒子の含有比率が体積比で 1% 以下であり、かつ前記粉体の平均密度に対して密度が 50% 以下の低密度粒子の含有比率が質量比で 1000ppm 以下であることを特徴としている。

(F) 本発明の電子機能材料の再生方法は、電子部品の製造工程で生じた廃材または廃電子部品から電子機能材料を回収する工程と、前記回収した電子機能材料を精製して、粉体状の電子機能材料を再生する工程とを有する電子機能材料の再生方法において、前記回収した電子機能材料を精製する過程で、前記粉体状電子機能材料を構成する粒子の粒径および密度に基づく抵抗力の差を利用して、前記粉体状電子機能材料から粗大粒子および高密度粒子を同時に分離除去する工程を実施することを特徴としている。

本発明の電子機能材料の再生方法において、分離除去工程は例えば粉

体状電子機能材料の平均粒径に対して粒径が250%以上の粗大粒子、および粉体状電子機能材料の平均密度に対して密度が120%以上の高密度粒子が同時に取り除かれるように実施される。また、分離除去工程は、例えば分級装置を用いて実施されるものである。

本発明の電子機能材料の再生方法は、さらに前記粉体状電子機能材料の平均粒径に対して粒径が50%以下の微小粒子、および前記粉体状電子機能材料の平均密度に対して密度が75%以下の低密度粒子を、前記粉体状電子機能材料から同時に取り除くように、前記分離除去工程を実施することを特徴としている。

10 本発明の他の電子機能材料の再生方法は、電子部品の製造工程で生じた廃材または廃電子部品から電子機能材料を回収する工程と、前記回収した電子機能材料を精製して、粉体状の電子機能材料を再生する工程とを有する電子機能材料の再生方法において、前記回収した電子機能材料を精製する過程で、前記粉体状電子機能材料を構成する粒子の粒径または密度に基づく抵抗力の差を利用して、前記粉体状電子機能材料から微小粒子および低密度粒子を同時に分離除去する工程を実施することを特徴としている。

#### 図面の簡単な説明

図1は本発明の二次電池用正極活物質を適用した非水電解液二次電池の一構成例を示す断面図、

図2は乾式分級装置の分級点と粒子状金属性不純物の除去率との関係の一例を示す図、

図3は本発明の実施例1による二次電池用正極活物質の分級前の粒度分布を示す図、

図4は本発明の実施例1による二次電池用正極活物質の分級後の粒度

分布を示す図、

図 5 は実施例 1 で分級した粗大粒子側の粒度分布を示す図、

図 6 は実施例 1 で分級した微小粒子側の粒度分布を示す図、

図 7 は本発明の実施例 7 による再生正極活物質中の粒径  $30\mu\text{m}$  以上の粗大粒子の含有比率と電圧降下との関係を示す図、

図 8 は本発明の実施例 7 による再生正極活物質の密度  $7\text{g}/\text{cm}^3$  以上の高密度粒子の含有比率と電圧降下との関係を示す図、

図 9 は本発明の実施例 7 による再生正極活物質の粒径  $0.5\mu\text{m}$  以下の微小粒子の含有比率と容量維持率との関係を示す図、

図 10 は本発明の実施例 7 による再生正極活物質の密度  $2.5\text{g}/\text{cm}^3$  以下の低密度粒子の含有比率と放電容量との関係を示す図、

図 11 は本発明の実施例 8 による再生蛍光体粉末中の粒径  $30\mu\text{m}$  以上の粗大粒子の含有比率と蛍光膜のドット落ち量との関係を示す図、

図 12 は本発明の実施例 8 による再生蛍光体粉末中の密度  $7\text{g}/\text{cm}^3$  以上の高密度粒子と蛍光膜のドット落ち量との関係を示す図、

図 13 は本発明の実施例 8 による再生蛍光体粉末中の粒径  $0.5\mu\text{m}$  以下の微小粒子の含有比率と蛍光膜の発光輝度との関係を示す図、

図 14 は本発明の実施例 8 による再生蛍光体粉末中の密度  $2.5\text{g}/\text{cm}^3$  以下の低密度粒子と蛍光膜の発光輝度との関係を示す図である。

#### 発明を実施するための形態

以下に、本発明を実施するための形態について説明する。

まず、本発明の二次電池用正極活物質とその製造方法、さらにそれを用いた非水電解液二次電池の実施形態について述べる。

本発明の二次電池用正極活物質は、リチウムイオン二次電池のような非水電解液二次電池の正極に用いられるものである。このような正極活

物質には、例えばリチウムを含む複合金属酸化物のような金属酸化物が用いられる。リチウム含有の複合金属酸化物としては、リチウム-コバルト複合酸化物、リチウム-ニッケル複合酸化物、リチウム-マンガン複合酸化物などが挙げられる。

リチウム-コバルト複合酸化物やリチウム-ニッケル複合酸化物は、基本的には  $\text{LiMO}_2$  (MはCoおよびNiから選ばれる少なくとも1種の元素を示す) で表されるものであるが、LiとCoやNiとの比率が化学量論組成より若干Liリッチ側 (例えば  $\text{Li}/\text{M}$  比 = 1~1.2) にずれているものであってもよい。CoやNiの一部はSn、Al、V、Cr、Fe、Mnなどの遷移金属元素で置換することができる。

リチウム-マンガン複合酸化物は、基本的には  $\text{LiMn}_2\text{O}_4$  で表されるものであるが、LiとMnの比率が化学量論組成より若干ずれているものであってもよい。この場合、Liリッチ (例えば  $\text{Li}/\text{Mn}$  比 = 0.5~0.65) とすることが好ましい。Mnの一部はSn、Al、V、Cr、Fe、Co、Niなどの遷移金属元素で置換してもよい。

本発明においては、上述したような金属酸化物からなる正極活物質から、粗大粒子と高密度粒子を共に除去している。すなわち、本発明の二次電池用正極活物質は、それを構成する金属酸化物の平均粒径に対して粒径が600%以上の粗大粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ金属酸化物の平均密度に対して密度が150%以上の高密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であることを特徴とするものである。これら粗大粒子および高密度粒子は、後に詳述する、粒子の粒径および密度に基づく抵抗力の差を利用した分離工程、具体的には分級による分離工程によって、同時に除去することができる。

粗大粒子の規定に関しては、具体的には粒径が  $30\mu\text{m}$  以上の粗大粒子の含有比率を体積比で1%以下とすることが好ましい。また、高密度



粒子の規定に関しては、具体的には密度が  $7\text{g/cm}^3$  以上の高密度粒子の含有比率を質量比で 1000ppm 以下とすることが好ましい。このような粗大粒子および高密度粒子は、以下に示すように、非水電解液二次電池の特性や製造性などに対して悪影響を及ぼすことから、本発明ではその含有比率の低減を図っている。

非水電解液二次電池の正極は、通常、以下のように作製している。すなわち、まず正極活物質としての複合金属酸化物などを焼成法により作製し、これを必要に応じて粉碎して粉体とする。正極活物質は、例えば酸化コバルトと炭酸リチウムとを所定の割合で混合し、空気中にて  $900^\circ\text{C} \times 5$  時間というような条件で焼成することにより合成される。焼成物は数  $\mu\text{m}$  ~ 数  $10\mu\text{m}$  程度の粒径に粉碎される。この後、導電剤および結着剤と共に適当な溶媒に懸濁させ、この懸濁物を集電体上に塗布、乾燥して薄板状にすることによって、正極が作製される。

上記したような粉体状の正極活物質中に粗大粒子や高密度粒子が混入していると、種々の問題を引き起こすことになる。粗大粒子や高密度粒子は電池歩留りの低下要因や電池性能（電池容量や充放電特性など）の劣化原因となる。本発明において、除去対象となる粗大粒子としては、正極活物質の凝集体（二次粒子）、正極活物質と結合剤との結合体（凝集体）、あるいは異物（不純物粒子）などが挙げられる。また、高密度粒子としては、粒子状の金属性不純物が挙げられる。

ここで、金属性不純物とは、正極活物質の構成に必要な金属酸化物以外の金属または金属イオンを含むものである。このような金属性不純物は、様々な理由で正極材料中に混入する。金属性不純物は、例えば正極活物質の原料である金属酸化物中に含まれていたり、また焼成物の粉碎工程や正極材料の混合工程などにおいて、活物質が製造装置で接触した際に装置壁面が削り取られることにより混入する。このような金属性不

純物は、鉄、銅、ニッケル、亜鉛などの金属、もしくはそれらを含む合金であることが多い。

上述したような金属性不純物のうち、特に粒径が大きい粒子状の金属性不純物は、非水電解液二次電池の初期充電時の電圧低下不良の原因となる。すなわち、粒子状の金属性不純物が正極活物質中に混入していると、二次電池を初期充電した際に、高い正極電位により粒子状不純物中の金属がイオンとなって溶出する。溶出した金属は負極側で還元されて負極上に析出して堆積する。金属イオンの堆積が進むとセパレータを貫通して正極と接触し、マイクロショートを引き起こすことになる。

このような現象は金属性不純物の粒子径が大きいほど顕著になる。金属性不純物粒子の表面は酸化されているのが普通であるが、粒径の大きい粒子は酸化されていない内部に金属イオンを比較的多量に含んでいる。従って、比較的大きい不純物粒子は溶出する金属イオンの量が多いため、マイクロショートを引き起こしやすい。

また、粒径が大きい不純物粒子が正極や負極の表面に存在すると、充電時に負極活物質へのリチウムイオンのインターカレーションが起こり、負極が膨張する。これにより電極群に圧力が加わり、不純物粒子がセパレータを貫通してマイクロショートが発生する。

上述したように、粒子状の金属性不純物は初期充電時の電圧低下不良の原因となる。このようなことから、本発明においては粒子状の金属性不純物に相当する高密度粒子の含有比率を質量比で 1000ppm 以下としている。このように、高密度粒子の含有比率を低減した正極活物質によれば、金属性不純物に起因する二次電池のマイクロショートを抑制することが可能であることから、電池特性および製造歩留りの向上を図ることができる。粒子状の金属性不純物は一部粗大粒子にも相当することから、粗大粒子の含有比率を低減することも、電池特性および製造歩留り

の向上に寄与する。

二次電池用正極活物質中の含有比率を規定した高密度粒子は、正極活物質を構成する金属酸化物の平均密度に対して密度が150%以上の粒子であり、具体的には密度が $7\text{g/cm}^3$ 以上の粒子の含有比率を規定することが好ましい。このような高密度粒子は、上記したようなマイクロショートが発生原因となるおそれ大きいことから、含有比率を質量比で1000ppm以下としている。高密度粒子の含有比率は質量比で500ppm以下、さらには100ppm以下とすることが好ましい。高密度粒子のより好ましい含有比率は10ppm以下である。

上述したように、高密度粒子は主として金属性不純物からなるものである。対象とする金属性不純物は、正極活物質の構成に必要な金属酸化物以外の金属または金属イオンを含むものであるが、特に不純物イオンとなりやすい金属を含む金属性不純物を除去することが好ましい。例えば、正極活物質としてリチウム-コバルト複合酸化物を用いる場合には、鉄、銅、亜鉛、ニッケル、マンガンなどの含有量を低減することが好ましい。

上記したような不純物金属の含有量が多いと、粒子状の金属不純物量も相対的に増大するため、各不純物金属の総含有量についても低減することが好ましい。具体的には、鉄は200ppm以下、銅は50ppm以下、亜鉛は30ppm以下、ニッケルは400ppm以下、マンガンは40ppm以下とすることが好ましい。不純物としての金属含有量を上記した範囲とすることによって、例えば初期充電時における電圧低下不良の発生をより有効に抑制することができる。不純物元素としての鉄の含有量は100ppm以下とすることがさらに好ましく、銅は25ppm以下、亜鉛は20ppm以下、ニッケルは100ppm以下、マンガンは20ppm以下とすることがさらに好ましい。

一方、正極活物質を構成する金属酸化物の平均粒径に対して粒径が600%以上の粗大粒子は、特に正極製造時の工程不良の原因となる。すなわち、最近の二次電池の薄型化や高出力化に伴って、正極の厚さ（塗布厚）は薄型化する方向に進んでいる。このため、正極活物質中に粗大粒子が存在すると、正極作製時の塗膜工程で塗工ヘッドと基板間に粗大粒子が滞留したり、また集電体である金属箔に破損などが生じる原因となる。さらに、電極の表面が粗くなってしまい、二次電池の体積当りの容量低下につながる。

そこで、本発明においては粗大粒子の含有比率を体積比で1%以下としている。このような正極活物質によれば、正極作製時の塗膜工程における不良発生を抑制することが可能であることから、二次電池の製造歩留りを高めることができる。

二次電池用正極活物質中の含有比率を規定した粗大粒子は、正極活物質を構成する金属酸化物の平均粒径に対して粒径が600%以上の粒子であり、具体的には粒径が $30\mu\text{m}$ 以上の粒子の含有比率を規定することが好ましい。このような粗大粒子は塗膜工程での不良原因となるおそれ大きいことから、その含有比率を体積比で1%以下としている。上記した粗大粒子の含有比率は体積比で0.5%以下とすることがより好ましい。さらに、金属酸化物の平均粒径に対して粒径が400%以上の粒子、あるいは粒径が $20\mu\text{m}$ 以上の粒子の含有比率を体積比で1%以下とすることが好ましい。

本発明の二次電池用正極活物質は、上述したように粗大粒子と高密度粒子を同時に除去したものである。このように、正極活物質から電池歩留りの低下要因や電池性能（電池容量や充放電特性など）の劣化原因となる粗大粒子と高密度粒子を同時に除去することによって、非水電解液二次電池の製造不良や初期不良を大幅に削減することができると共に、

電池性能の向上を図ることが可能となる。粗大粒子および高密度粒子の一方のみを除去しただけでは、除去対象からもれた粒子により製造歩留りの低下などが生じる。

さらに、本発明の二次電池用正極活物質は、上述した粗大粒子および高密度粒子の規定に加えて、正極活物質を構成する金属酸化物の平均粒径に対して粒径が 15% 以下の微小粒子の含有比率が体積比で 1% 以下であると共に、金属酸化物の平均密度に対して密度が 50% 以下の低密度粒子の含有比率が質量比で 1000ppm 以下であることが好ましい。

すなわち、微小粒子は容量が小さいため、あまり多く存在すると質量当りの容量低下につながる。さらに、同じ容量でも塗膜にした際の密度が小さくなるため、二次電池の体積当りの密度が小さくなる。低密度の粒子は電池容量の低下を招く。このようなことから、正極活物質中の微小粒子および低密度粒子の比率を低減することによって、非水電解液二次電池の性能をより一層向上させることが可能となる。

二次電池用正極活物質中の含有比率を規定した微小粒子は、正極活物質を構成する金属酸化物の平均粒径に対して粒径が 15% 以下の粒子であり、具体的には粒径が  $0.5\mu\text{m}$  以下の粒子の含有比率を規定することが好ましい。このような微小粒子は電池容量の低下原因となることから、その含有比率を体積比で 1% 以下とすることによって、二次電池の性能を向上させることができる。微小粒子の含有比率は体積比で 0.5% 以下とすることがより好ましい。さらに、金属酸化物の平均粒径に対して粒径が 20% 以下の粒子、あるいは粒径が  $0.8\mu\text{m}$  以下の粒子の含有比率を体積比で 1% 以下とすることが好ましい。

また、二次電池用正極活物質中の含有比率を規定した低密度粒子は、正極活物質を構成する金属酸化物の平均密度に対して密度が 50% 以下の粒子であり、具体的には密度が  $2.5\text{g}/\text{cm}^3$  以下の粒子の含有比率を

規定することが好ましい。このような低密度粒子は電池容量の低下原因となることから、その含有比率を質量比で 1000ppm 以下とすることによって、二次電池の性能を向上させることができる。低密度粒子の含有比率は質量比で 500ppm 以下、さらには 100ppm 以下とすることがより好ましい。また、金属酸化物の平均密度に対して密度が 70% 以下の粒子、あるいは密度が  $3.5\text{g/cm}^3$  以下の粒子の含有比率を質量比で 1000ppm 以下、さらには 100ppm 以下とすることが好ましい。

ここで、本発明における正極活物質の粒径に関する規定は、粒子にレーザ光を当てたときに起こる光の散乱現象を利用した、LEEDS & NORTHRUP 社製の MICROTRAC II PARTICLE-SIZE ANALYZER を用いて粒度分布を測定し、この粒度分布に基づいて求めるものとする。ただし、極微量の粗大粒子などは、粒度分布上ではその含有比率を判断することができない場合がある。このような場合には、粗大粒子や高密度粒子を分離除去した後に再度分級操作を行い、その際に粗大粒子側に分離された粒子に基づいて確認することができる。さらに、正極活物質を走査型電子顕微鏡により観察することによっても、粗大粒子や微小粒子の含有比率を確認することができる。

また、主として金属性不純物からなる高密度粒子の量は、金属性不純物のみを溶解し得る弱酸などを用いて処理し、処理後の液中に含まれる金属成分の量を測定することにより確認することができる。すなわち、Li 含有複合金属酸化物はシュウ酸などの弱酸に対して不溶であるが、金属性不純物はシュウ酸に溶解する。従って、正極活物質をシュウ酸などの弱酸で処理し、処理後の液中に含まれる鉄、銅、亜鉛、ニッケル、マンガンなどの量を測定することによって、正極活物質中の高密度粒子としての金属性不純物粒子の質量比を確認することができる。なお、前述した不純物金属の総含有量は、正極活物質中に含まれる不純物量を全

量分析することにより求められるものである。

上述した本発明の正極活物質は、以下のようにして製造される。

まず、通常の焼成法にしたがって、 $\text{LiCoO}_2$ 、 $\text{LiNiO}_2$ 、 $\text{LiMn}_2\text{O}_4$ などのLi含有複合金属酸化物を合成する。Li含有複合金属酸化物の合成工程は、リチウムの化合物とコバルト、ニッケル、マンガンなどの化合物とを原料として用い、これらを所定の比率で混合した後、例えば大気中にて  $650\sim 950^\circ\text{C}$  の温度で焼成することにより実施される。原料としての化合物には、酸化物、炭酸塩、硫酸塩、硝酸塩、水酸化物などが用いられる。これらは金属性不純物量が少ないものを使用することが好ましい。また、焼成に先立って、金属性不純物を除去するための精製を実施してもよい。

合成工程により得られたLi含有複合金属酸化物は、ボールミル、カッターミル、ハンマーミル、ジェットミルなどの粉砕機を用いて、例えば平均粒径が  $0.5\sim 15\mu\text{m}$ 、より好ましくは  $1\sim 10\mu\text{m}$  となるように粉砕される。この際、粒子状の金属性不純物などの量が増加しないように、例えば活物質が接触し得る機器の表面をセラミックスなどでコーティングすることも有効である。

このようにして得られる粉体状の正極活物質中には、原料中に含まれていた粒子状の金属性不純物や製造過程で混入した粒子状の金属性不純物などの高密度粒子、また正極活物質の凝集体（二次粒子）、正極活物質と結合剤との凝集体、不純物粒子などの粗大粒子が含まれている。また、微小粒子や低密度粒子が含まれている場合も多い。

そこで、得られた粉体状の正極活物質に対して、その粒径および密度に基づく抵抗力の差を利用した、粗大粒子および高密度粒子の分離除去工程を実施する。この分離工程によって、粗大粒子と高密度粒子、さらに微小粒子と低密度粒子が分離除去され、高品質の正極活物質が得られ

る。粗大粒子については 90% D 値（粒度分布で粒子の累積体積が 90% となったときの粒径）が小さくなるように、微小粒子については 10% D 値（粒度分布で粒子の累積体積が 10% となったときの粒径）が大きくなるように、分離除去工程を実施することが好ましい。

上述した分離除去工程は、重力、慣性力、遠心力などの物理力に対して、粒子の抵抗力がその粒径や密度によって異なることを利用したものである。具体的には、重力式、慣性力式、遠心力式などの各種の分級装置を使用して、粗大粒子と高密度粒子、あるいは微小粒子と低密度粒子を分離除去する。これら各粒子の除去操作は、同時に実施することができる。分級装置には、成分変動や凝集の防止、また後工程の容易さなどから、乾式のものを使用することが好ましい。すなわち、粗大粒子と高密度粒子を正極活物質の状態を変化させることなく除去することが可能な乾式の分級装置を使用することが好ましい。

乾式の分級装置としては、上述した重力式、慣性力式、遠心力式などの種々のものが知られている。重力式の分級装置は、粒子の落下速度や位置の違いにより分級を行うものであり、代表的な機種としては水平粒径型、垂直粒径型、ジグザグ型などが知られている。また、慣性力式の分級装置は、粒子の慣性力を利用して分級を行うものであり、直線型、曲線型、ルーバー型、エルボージェット、バリアブルインパクトなどが知られている。

遠心力式の分級装置は、自由渦、半自由渦による遠心力、あるいは強制渦による遠心力と、流体抵抗力との釣合いを利用して分級を行うものであり、代表的な機種としてはサイクロン、ファントンゲレン、クラシクロン、ディスパーションセパ、マイクロブックス、ミクロンセパレータ、ターボブックス、アキュカット、ターボクラシファイアなどが知られている。



本発明において、粗大粒子と高密度粒子の分離除去工程は、上述したような分級装置を利用することによって有効に実施されるものである。

すなわち、粗大粒子や微小粒子を取り除く方法としては、篩分け（湿式または乾式）が一般的であるが、正極活物質の粒径は数 $\mu\text{m}$ から数10 $\mu\text{m}$ 程度と小さいため、乾式の篩分けでは目詰まりがすぐに起こってしまい、到底工業的に利用することはできない。乾式の篩分けは100 $\mu\text{m}$ 以下のオーダーではすぐに目詰まりしてしまう。

一方、湿式篩によれば目詰まりの問題は解消できるものの、正極活物質の粒径が数 $\mu\text{m}$ から数10 $\mu\text{m}$ 程度と小さいことに加えて、混入する凝集塊などの粗大粒子は本来の活物質粒子との粒径差が小さいことから、通常の湿式篩では十分な分離精度を得ることができない。さらに、湿式篩では活物質粒子との粒径差が小さい粒子状の金属性不純物を除去することができない。湿式篩ではスラリー化して篩を通すため、最終的に粉末状の再生材料を得るためには乾燥が必要であるが、凝集させないように乾燥させることは困難である。加えて、湿式篩ではスラリー化した際に、活物質からのリチウムの溶出、活物質の表面状態の変化、またその他による電池性能の低下などが懸念される。

一方、金属性不純物の除去には、除鉄機の使用も考えられる。除鉄機は希土類磁石などを使用して、磁性物質を除去するものである。従って、磁性をもたないニッケルや亜鉛を除去することはできない。さらに、除鉄機は金属性不純物の除去効率自体も劣るものである。

上述したような従来の不純物除去工程に対して、分級装置を使用した分離工程によれば、正極活物質から粗大粒子と高密度粒子、さらには微小粒子と低密度粒子を容易にかつ精度よく分離除去することができる。粗大粒子と高密度粒子に関しては同時に分離除去することができる。これは二次電池の性能や製造歩留りを高める上で重要である。微小粒子と

低密度粒子についても同様である。

すなわち、通常の活物質粒子の粒径に対して、製造工程で問題となる粗大粒子の粒径は 250% 以上程度あり、また正極活物質の密度が  $5\text{g/cm}^3$  程度であるのに対し、金属性不純物の密度は  $7\sim 9\text{g/cm}^3$  程度である。これらの差はいずれも分級機で分離を実施する上で十分な値といえることができる。例えば、遠心力式の乾式分級装置では、粒子の半径および密度に基づいて、細かく分級点を設定することができるため、粒径差が小さい凝集塊などの粗大粒子や粒子状の金属性不純物などを同時にかつ精度よく分離除去することができる。また、微小粒子と低密度粒子についても同様である。

本発明においては、上述したような種々の分級装置が粗大粒子と高密度粒子を同時に分離除去する工程、さらには微小粒子と低密度粒子を同時に分離除去する工程に使用される。微小粒子と低密度粒子の分離除去は、分級装置の条件設定によって、粗大粒子と高密度粒子の分離除去と同時に実施される。本発明では、特に、(1) 分散性能が高い、(2) 分級精度が高い、(3) 粒子を粉碎しない (ダメージが小さい)、という条件を満足する分級装置を使用することが好ましい。

(1) に関しては、正極活物質は粒径  $20\mu\text{m}$  以下の粒子がほとんどであり、粒子が細かいために凝集性が高い。従って、強い分散をかけないと一次粒子の大きさを基準とした分級を実施することができず、分級精度に影響する。(2) に関しては、電池性能に影響する粗大粒子、高密度粒子、微小粒子、低密度粒子の混入がないことが好ましく、微量でも存在すると電池のショートなどの致命的な欠陥につながることもある。

(3) に関しては(1)と関係するが、分散が強すぎると一次粒子が粉碎されて微粉が発生し、歩留り低下と電池性能の劣化につながる。また粉碎されなくても、粒子に強い力がかかると結晶にひずみが生じて、二次電

池の特性が劣化するおそれがある。

このようなことから、本発明では上記した(1)～(3)の条件を全て満たす分級装置を使用することが望ましい。上記条件を満たす分級装置として、本発明では遠心力式の乾式分級装置を使用することが好ましい。特に、分散性能が高く精密分級が可能な、遠心力に対する流体抵抗力の差を利用した分級装置が望ましい。

上述したような分級装置を利用した分離除去工程は、粉体状の正極活物質の平均粒径に対して粒径が250%以上の粗大粒子、および平均密度に対して密度が120%以上の高密度粒子が取り除かれるように分級条件を設定して実施することが好ましい。具体的には、上記した粗大粒子や高密度粒子が除去されるような分級点を設定することが好ましい。粒子状の金属性不純物を除去するという観点からは、分級点を $15\mu\text{m}$ 以下に設定することが好ましい。

図2は乾式分級機の分級ロータの回転数(遠心力)と空気流量(空気抵抗力)を調整し、分級点を変化させて分級した際の粒子状金属性不純物の除去率の一例を示している。粒子状の金属性不純物は、分級点を $15\mu\text{m}$ 以下とした場合にはほぼ100%除去されるが、それを超えると除去率が低下する。これは粒子状の金属性不純物の粒径がおおよそ $15\mu\text{m}$ 以上であるためと考えられる。従って、粒子状の金属性不純物に関しては、分級点を $15\mu\text{m}$ 以下に設定することで十分に分離除去することが可能となり、これにより二次電池の初期充電時の電圧低下不良を顕著に抑制することができる。

また、微小粒子および低密度粒子については、粉体状の正極活物質の平均粒径に対して粒径が50%以下の微小粒子、および平均密度に対して密度が75%以下の低密度粒子が取り除かれるように分級条件を設定することが好ましい。微小粒子と低密度粒子は、粗大粒子および高密度

粒子と同一操作内で同時に分離除去することができる。

なお、本発明の正極活物質の製造方法においては、分級操作を行う前の活物質粉末の平均粒径および平均密度に基づいて条件設定するが、通常除去する粒子の含有率は僅かであるため、上記した平均粒径および平均密度は目的とする正極活物質粉末の平均粒径および平均密度とほぼ等しいものである。

上述したような分離除去工程（分級工程）を経て得られる二次電池用正極活物質は、平均粒径に対して粒径が 600%以上の粗大粒子の含有比率が体積比で 1%以下、かつ平均密度に対して密度が 150%以上の高密度粒子の含有比率が質量比で 1000ppm 以下という条件を満足するものである。さらには、平均粒径に対して粒径が 15%以下の微小粒子の含有比率が体積比で 1%以下、かつ平均密度に対して密度が 50%以下の低密度粒子の含有比率が質量比で 1000ppm 以下という条件を満足するものである。本発明においては、粗大粒子の含有比率と高密度粒子の含有比率、微小粒子の含有比率と低密度粒子の含有比率の全ての条件を満足させることが望ましい。

分離除去工程（分級工程）を経て得られる二次電池用正極活物質は、次いで導電剤と混合された後、さらに結着剤および溶媒が加えられてスラリー化される。このスラリーを集電体（金属箔など）上に塗布し、加熱乾燥して薄板状にした後、所定の寸法に切断されて正極として用いられる。なお、分級工程は正極活物質を導電剤と混合した後に実施することも可能である。正極活物質を導電剤と混合した後に分級した場合には、導電剤中に含まれる不純物粒子や粗大粒子も除去することができる。ただし、このような工程を適用した場合には、導電剤の一部まで低密度粒子側に分離されてしまうおそれがある。

次に、本発明の非水電解液二次電池の実施形態について説明する。

図 1 は本発明の非水電解液二次電池をリチウムイオン二次電池に適用した一実施形態の構造を一部断面で示す図である。同図において、1 は例えばステンレスからなる電池容器（電池缶）である。この電池容器 1 の底部には絶縁体 2 が配置されている。電池容器 1 の形状としては、例えば有底円筒状や有底角筒状などが適用される。本発明は円筒形二次電池および角型二次電池のいずれにも適用可能である。

電池容器 1 は負極端子を兼ねている。電池容器 1 内には発電要素として電極群 3 が収納されている。電極群 3 は、正極 4、セパレータ 5 および負極 6 をこの順序で積層した帯状物を、負極 6 が外側に位置するように、例えば渦巻き状に巻回した構造を有している。電極群 3 は渦巻き型に限らず、正極 4、セパレータ 5 および負極 6 をこの順序で複数積層したものであってもよい。

電極群 3 が収納された電池容器 1 内には、非水電解液が充填されている。電池容器 1 内の電極群 3 の上方には、中央部が開口された絶縁紙 7 が載置されている。電池容器 1 の上方開口部には絶縁封口板 8 が配置されている。絶縁封口板 8 は、電池容器 1 の上端部付近を内側にかしめ加工することによって、電池容器 1 に対して液密に固定されている。

絶縁封口板 8 の中央部には、正極端子 9 が嵌合されている。正極端子 9 には正極リード 10 の一端が安全弁 11 を介して接続されている。正極リード 10 の他端は、正極 4 に接続されている。負極 6 は図示しない負極リードを介して、負極端子である電池容器 1 に接続されている。これらによって、非水電解液二次電池としてのリチウムイオン二次電池 12 が構成されている。

次に、電極群 3 を構成する正極 4、セパレータ 5 および負極 6 と非水電解液について、さらに詳しく述べる。まず、正極 4 は本発明の二次電池用正極活物質、導電剤および結着剤を適当な溶媒に懸濁し、この懸濁

物を集電体上に塗布、乾燥して薄板状にすることにより作製される。

正極活物質に混合される導電剤や結着剤としては、従来から非水電解液二次電池用として用いられている、種々の材料を使用することができる。導電剤としてはアセチレンブラック、カーボンブラック、黒鉛などが用いられる。結着剤としては、ポリテトラフルオロエチレン (PTFE)、ポリフッ化ビニリデン (PVDF)、エチレン-プロピレン-ジエン共重合体 (EPDM)、スチレン-ブタジエンゴム (SBR) などが用いられる。

正極活物質、導電剤および結着剤の配合割合は、正極活物質 80~95 質量%、導電剤 3~20 質量%、結着剤 2~7 質量%の範囲とすることが好ましい。正極活物質、導電剤および結着剤を含む懸濁物を塗布する集電体としては、例えばアルミニウム箔、ステンレス箔、ニッケル箔などが用いられる。

セパレータ 5、負極 6、非水電解液などの他の電池構成要素についても、従来から非水電解液二次電池用として用いられている種々の材料や構成を適用することができる。例えば、セパレータ 5 としては合成樹脂製不織布、ポリエチレン製多孔質フィルム、ポリプロピレン製多孔質フィルムなどが用いられる。

負極 6 は負極活物質と結着剤とを適当な溶媒に懸濁し、この懸濁液を集電体上に塗布、乾燥して薄板状とすることにより作製される。負極活物質としては、リチウムイオンを吸蔵・放出することが可能な、熱分解炭素類、ピッチ・コークス類、グラファイト類、ガラス状炭素類、フェノール樹脂やフラン樹脂のような有機高分子化合物の焼成体、炭素繊維、活性炭などの炭素材料、または金属リチウム、Li-Al 合金のようなリチウム合金、ポリアセチレンやポリビロールのようなポリマーなどが用いられる。結着剤には正極 5 と同様なものが用いられる。

負極活物質と結着剤の配合割合は、負極活物質 90～95 質量%、結着剤 2～10 質量%の範囲とすることが好ましい。負極活物質および結着剤を含む懸濁物を塗布、乾燥させる集電体としては、例えば銅、ステンレス、ニッケルなどの箔、メッシュ、パンチドメタル、ラスメタルなどが用いられる。

さらに、非水電解液は非水溶媒に電解質を溶解することにより調製される。非水溶媒としては、例えばリチウムイオン二次電池の溶媒として公知の各種非水溶媒を用いることができる。非水電解液用の非水溶媒は特に限定されるものではないが、例えばプロピレンカーボネート、エチレンカーボネートなどと、ジメチルカーボネート、メチルエチルカーボネート、ジエチルカーボネート、γ-ブチロラクトン、1,2-ジメトキシエタン、1,2-ジエトキシエタン、エトキシメトキシエタンなどとの混合溶媒などが用いられる。

電解質としては、 $\text{LiPF}_6$ 、 $\text{LiBF}_4$ 、 $\text{LiClO}_4$ 、 $\text{LiAsF}_6$ 、 $\text{LiCF}_3\text{SO}_3$ などのリチウム塩が例示される。このような電解質の非水溶媒に対する溶解量は 0.5～1.5mol/L (リットル) の範囲とすることが好ましい。

上述したような本発明を適用したリチウムイオン二次電池 12 においては、正極活物質中の粗大粒子や高密度粒子などを除去しているため、初期充電時のマイクロショートが発生などを有効に抑制することができる。また正極作製時の工程不良の発生なども抑制することができる。従って、リチウムイオン二次電池 12 の製造歩留りを大幅に高めることが可能となる。さらに、粗大粒子や高密度粒子などは電池性能の低下要因ともなるため、これらの粒子を除去することによって、リチウムイオン二次電池 12 の性能の向上を図ることが可能となる。

次に、本発明の再生電子機能材料と電子機能材料の再生方法の実施形

態について説明する。まず、本発明の再生方法を二次電池用正極活物質の再生に適用した実施形態について述べる。

リチウムイオン二次電池のような非水電解液二次電池の製造工程においては、条件だしや規定サイズへの裁断などによって、正極活物質が付着した廃電極が大量に発生する。これを回収して正極活物質が再生される。使用済みの二次電池から回収した廃電極についても、同様に回収して正極活物質を再生する。正極活物質として用いられるリチウム含有複合金属酸化物はいずれも高価であることから、再利用の効果が大きい。

具体的には、まず廃電極を適当な大きさ（例えば 100×100mm 以下の小片）に切断し、これを 350～450℃の温度で熱処理（一次熱処理）する。この一次熱処理によって、正極材料中に含まれる結合剤成分の一部が分解されるため、正極材料の塗膜は Al 箔などから剥離する。これを篩にかけて Al 箔を除去し、正極材料を回収する。

次いで、回収した正極材料を 500～700℃の温度で熱処理（二次熱処理）する。この二次熱処理によって、導電剤としてのカーボンや結合剤の分解残渣であるカーボンを燃焼除去する。一次熱処理および二次熱処理には、通常の熱処理炉やロータリーキルンを使用することができるが、特に二次熱処理にはロータリーキルンを適用することが好ましい。得られた熱処理物を必要に応じて篩にかけて、粉体状の正極活物質のみを取り出す。

ただし、この段階の正極活物質は、活物質の凝集塊や活物質と結合剤との結合体などの粗大粒子、Al 箔や熱処理炉の内壁などから混入した不純物粒子（高密度粒子や低密度粒子）、熱処理工程での脆化に起因する微小粒子などを含んでおり、そのまま再利用すると二次電池の性能劣化や製造歩留りの低下などを招くことになる。

そこで、再生した粉体状正極活物質に対して、活物質粒子の粒径およ



び密度に基づく抵抗力の差を利用した分離工程を実施する。この分離工程によって、粗大粒子や高密度粒子、あるいは微小粒子や低密度粒子が分離除去され、高品質の再生正極活物質が得られる。分離除去工程は前述したように、重力、慣性力、遠心力などの物理力に対して、粒子の抵抗力がその粒径や密度により異なることを利用したものであり、各種の分級装置を使用して実施することができる。具体的な分級工程については、前述した正極活物質の製造工程で説明した通りである。

分級条件は、正極活物質の製造工程時と同様に、再生した粉体状正極活物質の平均粒径に対して粒径が 250% 以上の粗大粒子、および平均密度に対して密度が 120% 以上の高密度粒子が取り除かれるように設定することが好ましい。微小粒子および低密度粒子についても同様であり、再生した粉体状正極活物質の平均粒径に対して粒径が 50% 以下の微小粒子、および平均密度に対して密度が 75% 以下の低密度粒子が取り除かれるように、分級条件を設定することが好ましい。

上述したような分離除去工程（分級工程）を経て得られる再生正極活物質は、平均粒径に対して粒径が 600% 以上の粗大粒子の含有比率が体積比で 1% 以下、平均密度に対して密度が 150% 以上の高密度粒子の含有比率が質量比で 1000ppm 以下という条件を満足するものである。あるいは、平均粒径に対して粒径が 15% 以下の微小粒子の含有比率が体積比で 1% 以下、平均密度に対して密度が 50% 以下の低密度粒子の含有比率が質量比で 1000ppm 以下という条件を満足するものである。これらのさらに好ましい条件などは前述した正極活物質と同様である。

本発明の再生正極活物質は、粗大粒子の含有比率、高密度粒子の含有比率、微小粒子の含有比率、低密度粒子の含有比率の全ての条件を満足させることが特に望ましい。具体的な粒径および密度については、粒径が  $30\mu\text{m}$  以上の粗大粒子や粒径が  $0.5\mu\text{m}$  以下の微小粒子の含有比率

をそれぞれ体積比で 1%以下とすることが好ましい。また、密度が  $7\text{g/cm}^3$  以上の高密度粒子や密度が  $2.5\text{g/cm}^3$  以下の低密度粒子の含有比率をそれぞれ質量比で 1000ppm 以下とすることが好ましい。

上述した再生正極活物質は、電池歩留りの低下要因や電池性能（電池容量や充放電特性など）の劣化原因となる粗大粒子や高密度粒子、また同様に電池性能を低下させる微小粒子や低密度粒子の含有比率が極めて少ないため、これを非水電界液二次電池に再使用した際に性能劣化や歩留り低下などを招くことがない。本発明によれば高特性の再生正極活物質を、再合成処理を行うことなく確実に得ることができる。

次に、本発明の再生方法を蛍光体材料の再生に適用した実施形態について述べる。蛍光体材料は、陰極線管や蛍光ランプなどの電子管の作製に使用されている。このような電子管の作製にあたって、蛍光体はスラリー化されて蛍光膜の形成に用いられる。蛍光膜の形成工程では余剰の蛍光体スラリーが多量に生じるため、この余剰スラリーを回収し、回収した蛍光体スラリーから蛍光体粉末を再生する。

赤色発光蛍光体は高価な希土類元素を主成分とするため、種々の方法で回収、再生して再利用することが行われている。回収した赤色蛍光体スラリーへの不純物の混入が比較的少ない場合には、不純物を物理・機械的に分離除去した後、乾燥、篩分けなどの工程に供される。

回収した赤色蛍光体スラリーが比較的多くの不純物を含む場合、例えば青色蛍光体スラリーや緑色蛍光体スラリーなどが混入しているような場合には、以下に示すような再生工程を実施する。まず、回収した赤色蛍光体スラリーを、必要に応じて脱イオン水に分散させ、また必要に応じてろ過して異物などを除去した後、薬品洗浄工程、カーボン除去工程および酸洗浄工程を順に行う。

薬品洗浄工程は、通常 2 段階に分けて行われる。まず、第 1 段階で

は蛍光体スラリーに次亜塩素酸塩（次亜塩素酸ナトリウムや次亜塩素酸カリウムなど）のような過酸化物を添加して攪拌し、蛍光体スラリー中に存在する重クロム酸アンモニウムのようなクロム化合物を分解除去する。次いで、水洗してクロム化合物の分解物を除去した後、第２段階として過ヨウ素酸塩（過ヨウ素酸アンモニウムや過ヨウ素酸カリウムなど）のような過ヨウ素酸化合物を添加して攪拌し、スラリー中に含まれるポリビニルアルコールのような有機化合物を分解除去する。

次に、薬品洗浄工程を経た蛍光体スラリーを静置して沈降させ、水相を系外に除去した後、カーボン除去工程としてアンモニア水を加えて攪拌する。攪拌後に静置することによって、蛍光体は沈降し、上澄み液中にカーボンが浮遊する。このカーボンを含む上澄み液を系外に除去し、必要に応じて水洗を行う。

続いて、赤色蛍光体スラリー中に混入している緑色発光蛍光体や青色発光蛍光体を、酸洗浄工程により除去する。酸としては塩酸や硝酸が用いられ、第１段階で塩酸、第２段階で硝酸を用いる２段階法によることが望ましい。

この後、上記した各工程を経た赤色蛍光体スラリーをろ過して固形分を取り出した後、乾燥を施すことによって、粉末状の赤色蛍光体を得る。ただし、この段階の赤色蛍光体粉末は、蛍光体粉末の凝集塊のような粗大粒子、乾燥工程や攪拌工程などで生じた微小粒子、さらにコンタミとしての高密度粒子や低密度粒子を含んでおり、そのまま再利用すると陰極線管の性能劣化などを招くおそれ大きい。例えば、粗大な粒子は蛍光体塗布時のピンホールの原因となり、蛍光体以外の不純物としての金属粒子は金属汚染を引き起こす。これらによって、陰極線管の製造歩留りが低下する。微小粒子や低密度粒子も品質悪化の原因となる。

そこで、乾燥後の赤色蛍光体粉末に対して、蛍光体粒子の粒径および

密度に基づく抵抗力の差を利用した分離工程を実施する。この分離工程によって、粗大粒子や高密度粒子、また微小粒子や低密度粒子が分離除去され、高品質の再生赤色蛍光体粉末が再現性よく得られる。

青色蛍光体スラリーおよび緑色蛍光体スラリーについては、必要に応じて脱イオン水に分散させ、また必要に応じて、ろ過して異物を除去した後、温水洗浄を行う。温水洗浄工程は 30～80℃程度の温水の存在下で、青色または緑色蛍光体スラリーをそれぞれ攪拌することにより、各スラリー中に含まれるポリビニルアルコールやクロム化合物などの水溶性物質を除去する工程である。なお、温水洗浄は数回、例えば 4 回程度繰り返すことが望ましい。

この後、温水洗浄を施した青色または緑色蛍光体スラリーをろ過して固形分を取り出した後、乾燥を施すことによって、粉末状の青色または緑色蛍光体を得る。この段階の青色または緑色蛍光体粉末は、赤色蛍光体粉末と同様に、粗大粒子、微小粒子、高密度粒子、低密度粒子などを含んでいるため、蛍光体粒子の粒径および密度に基づく抵抗力の差を利用した分離工程を実施する。この分離工程によって、粗大粒子や高密度粒子、また微小粒子や低密度粒子が分離除去され、高品質の再生青色または緑色蛍光体粉末が再現性よく得られる。

再生蛍光体粉末などを分級する場合においても、(1)分散性能が高い、(2)分級精度が高い、(3)粒子を粉碎しない、という条件を満足する分級装置を使用することが好ましい。(1)に関しては、蛍光体をはじめとする電子機能材料は 20  $\mu\text{m}$  以下の粒子がほとんどであり、凝集性が高いことから、強い分散をかけないと一次粒子を基準とした分級を実施することができない。(2)に関しては、電子機能材料の性能に影響する粗大粒子、微粒子、高密度粒子、低密度粒子を高精度に分離する必要がある。(3)に関しては、分散が強すぎると微粉が発生するなどして、

歩留り低下と電子機能材料の特性劣化につながる。

このようなことから、各種の再生電子機能材料を分級する場合においても、上記した(1)～(3)の条件を全て満たす分級装置を使用することが望ましい。上記条件を満たす分級装置として、本発明の再生方法では遠心力式の分級装置を使用することが好ましい。特に、分散性能が高く精密分級が可能な、遠心力に対する流体抵抗力の差を利用した乾式分級装置が望ましい。

上述したような分級により分離除去する粗大粒子としては、蛍光体をはじめとする電子機能材料の凝集体（二次粒子）、蛍光体と他材料との結合体（凝集体）、あるいは異物（不純物粒子）などが挙げられる。ここでは、再生後の蛍光体の特性を考慮して、再生蛍光体粉末（粉体状電子機能材料）の平均粒径に対して粒径が250%以上の粗大粒子、および平均密度に対して密度が120%以上の高密度粒子を取り除くように分級条件を設定して、分離除去工程を実施することが好ましい。

微小粒子および低密度粒子については、同様に再生後の蛍光体の特性を考慮して、再生蛍光体粉末の平均粒径に対して粒径が50%以下の微小粒子や平均密度に対して密度が75%以下の低密度粒子を取り除くように、分級条件を設定することが好ましい。微小粒子および低密度粒子は、分級装置の選定などに基づいて、粗大粒子および高密度粒子と同一操作内で同時に分離除去することができる。

なお、本発明では分級操作を行う前の蛍光体粉末の平均粒径および平均密度に基づいて条件設定するが、通常除去する粒子の含有率は僅かであるため、上記した平均粒径および平均密度は目的とする再生蛍光体粉末の平均粒径および平均密度とほぼ等しいものである。

上述したような分離除去工程（分級工程）を経て得られる再生蛍光体粉末は、平均粒径に対して粒径が600%以上の粗大粒子の含有比率が

体積比で 1%以下、平均密度に対して密度が 150%以上の高密度粒子の含有比率が質量比で 1000ppm 以下という条件を満足するものである。あるいは、平均粒径に対して粒径が 15%以下の微小粒子の含有比率が体積比で 1%以下、平均密度に対して密度が 50%以下の低密度粒子の含有比率が質量比で 1000ppm 以下という条件を満足するものである。これらのさらに好ましい条件などは、前述した再生正極活物質と同様である。

上述した再生蛍光体粉末は、蛍光膜の塗膜品位や製品歩留りの低下要因となる粗大粒子および高密度粒子、また同様に輝度の低下原因などとなる微小粒子および低密度粒子の含有比率が極めて少ないため、これを陰極線管に再使用した際に性能劣化などを招くことがない。本発明の再生方法によれば、高特性の再生蛍光体粉末を、再合成処理を行うことなく確実に得ることができる。これは蛍光体粉末をはじめとする各種電子機能材料の再生、再利用に大きく寄与するものである。

本発明を適用した蛍光体材料の再生方法は、陰極線管の作製に用いられる蛍光体スラリー（余剰スラリー）からの回収、再生に限られるものではなく、蛍光ランプなどの他の電子管の作製に使用した蛍光体スラリー、さらには廃陰極線管や廃蛍光ランプからの回収、再生に適用することもできる。

本発明を適用した蛍光体材料の再生方法は、電子管の製造工程で生じた余剰の蛍光体スラリーまたは廃電子管から蛍光体を回収する工程と、回収した蛍光体を精製して、蛍光体粉末を再生する工程とを具備し、回収した蛍光体を精製する過程で、蛍光体粉末を構成する粒子の粒径または密度に基づく抵抗力の差を利用して、蛍光体粉末から粗大粒子および高密度粒子を同時に分離除去する工程を実施するものである。分離除去工程においては、蛍光体粉末から微小粒子および低密度粒子をさらに分

離することができる。

さらに、上述した粗大粒子や高密度粒子、もしくは微小粒子や低密度粒子の分離除去工程（分級工程）は、蛍光体粉末の再生工程のみならず、通常の蛍光体粉末の製造工程においても効果を発揮する。すなわち、通常の蛍光体の製造工程に基づいて蛍光体粉末を製造する。具体的には、蛍光体原料を融剤と混合して焼成した後、この焼成物を洗浄および乾燥して蛍光体粉末を製造する。このような蛍光体粉末に対して、上述した粗大粒子、高密度粒子、微小粒子、低密度粒子の分離除去工程（分級工程）を実施すると、より高輝度の蛍光体粉末を得ることができる。具体的な分級条件は前述した通りである。

このような蛍光体粉末の製造方法によれば、平均粒径に対して粒径が600%以上の粗大粒子、もしくは粒径が $30\mu\text{m}$ 以上の粗大粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ平均密度に対して密度が150%以上の高密度粒子、もしくは密度が $7\text{g}/\text{cm}^3$ 以上の高密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下である蛍光体粉末が得られる。さらに、このような蛍光体粉末においては、平均粒径に対して粒径が15%以下の微小粒子、もしくは粒径が $0.5\mu\text{m}$ 以下の微小粒子の含有比率を体積比で1%以下とし、かつ平均密度に対して密度が50%以下の低密度粒子、もしくは密度が $2.5\text{g}/\text{cm}^3$ 以下の低密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下とすることができる。

なお、上述した実施形態では本発明の再生方法を正極活物質および蛍光体の再生に適用した例について説明したが、本発明の電子機能材料の再生方法および再生電子機能材料はこれらに限られるものではない。例えば、磁石などに用いられる磁性粉体、半導体や液晶関係の薄膜形成に用いられる高純度金属粉末、印字用のトナー粉末のようなカーボンを主体とした粉末などの電子機能材料を再生する場合においても有効に適用

し得るものである。

次に、本発明の具体的な実施例およびその評価結果について述べる。

#### 実施例 1

この実施例 1 では、本発明の正極活物質の製造方法について述べる。

まず、酸化コバルト粉末と炭酸リチウムと酸化スズとを所定の割合で混合し、空気中にて 900°C で 5 時間焼成して、正極活物質として Sn 含有  $\text{LiCoO}_2$  粉末を得た。得られた Sn 含有  $\text{LiCoO}_2$  粉末の平均粒径 (50% D 値) は  $3.71\mu\text{m}$  であった。

この正極活物質粉末に対して気流式分級装置を用いて分級処理を施し、粗大粒子と高密度粒子、さらに微小粒子と低密度粒子を除去した。分級点に影響する風量、分散条件、ロータ回転数の値を適宜選択して、分級装置の運転を行った。収量比は粗大粒子側 2%、微小粒子側 0.5%、これらを除去した後の正極活物質 97.5% であった。これらの値は粒子の累積体積である。分級の前後の粒度分布を表 1 および図 3、図 4 に示す。また、除去した粗大粒子および微小粒子の粒度分布を図 5、図 6 に示す。

正極活物質粉末の粒度分布は以下のようにして測定した。まず、試料を 0.5g 採取し、これを 100ml の水中に投入して攪拌した。さらに超音波分散を 100W, 3min の条件で行った後、LEEDS & NORTHROP 社製の MICROTRAC II PARTICLE-SIZE ANALYZER TYPE7997-10 を使用して粒度分布を測定した。10% D 値、50% D 値 (平均粒径)、90% D 値は、得られた粒度分布から求めた。



表 1

粒径 ( $\mu\text{m}$ )	分級前		分級後		粒径 ( $\mu\text{m}$ )	分級前		分級後	
	頻度 (%)	累積 (%)	頻度 (%)	累積 (%)		頻度 (%)	累積 (%)	頻度 (%)	累積 (%)
0.20	0.00	0.00	0.00	0.00	2.75	8.79	26.92	9.65	29.99
0.24	0.00	0.00	0.00	0.00	3.27	12.36	39.28	13.20	43.19
0.29	0.00	0.00	0.00	0.00	3.89	14.86	54.14	15.27	58.46
0.34	0.00	0.00	0.00	0.00	4.62	14.72	68.86	14.44	72.90
0.41	0.00	0.00	0.00	0.00	5.50	11.92	80.78	11.11	84.01
0.49	0.00	0.00	0.00	0.00	6.54	8.11	88.89	7.16	91.17
0.58	0.39	0.39	0.38	0.38	7.78	4.85	93.74	4.09	95.28
0.69	0.55	0.94	0.58	0.94	9.25	2.75	96.49	2.26	97.52
0.82	0.77	1.71	0.81	1.75	11.00	1.57	98.06	1.27	98.79
0.97	1.06	2.77	1.18	2.93	13.08	0.94	99.00	0.75	99.54
1.16	1.43	4.20	1.63	4.56	15.56	0.60	99.60	0.46	100.00
1.38	1.90	6.10	2.19	6.75	18.50	0.40	100.00	0.00	100.00
1.64	2.57	8.67	2.95	9.70	22.0	0.00	100.00	0.00	100.00
1.94	3.74	12.41	4.24	13.94	26.16	0.00	100.00	0.00	100.00
2.31	5.72	18.13	6.40	20.34	31.11	0.00	100.00	0.00	100.00

分級前後の粒度分布は、除去した粗大粒子や微小粒子が微量であるため、ほとんど変化していないが、除去した粗大粒子の粒度分布を見ると  $10\mu\text{m}$  以上の粒子が多く存在しており、分級前の粉末には  $10\mu\text{m}$  以上の粗大粒子が多く存在していたことが分かる。また、頻度が低いために、粒度分布測定では確認できないが、目視では  $0.5\text{mm}$  程度の超粗大粒子も含まれており、これも除去することができた。

分級後の粗大粒子の粒度分布は、理想的には 1 ピークであるが、図 5 に示したように 2 ピークになることが多い。これは粉末の凝集性が高いためである。すなわち、本来一次粒子は小さいが、凝集して粗大粒子側に分級された粒子が、粒度分布の測定前にほぐれた結果である。除去した微小粒子の粒度分布からは、粒度  $0.7\mu\text{m}$  程度の微小粒子が分級前の粉末に存在していたことが分かる。

このような正極活物質を使用して、以下のようにしてリチウムイオン二次電池を作製した。また、本発明との比較例 1 として、分級装置による分離除去工程を実施しない以外は、この実施例 1 と同様に作製した正

極活物質を用いて、同様にリチウムイオン二次電池を作製した。

まず、正極活物質 90 質量%と導電剤としてグラファイト 6 質量%と結着剤としてポリフッ化ビニリデン 4 質量%とを混合して正極合剤を調製した。この正極合剤を N-メチル-2-ピロリドンに分散させてスラリー状とし、これをアルミニウム箔に塗布、乾燥させた後、ローラプレス機で圧縮成形した。これを所定のサイズに裁断することによって、シート状の正極を得た。

次に、炭素材料 93 質量%と結合剤としてのポリフッ化ビニリデン 7 質量%とを混合して負極合剤を調製した。この負極合剤を用いる以外は、正極と同様にしてシート状の負極を作製した。

上述したシート状の正極と微孔性ポリエチレンフィルムからなるセパレータとシート状の負極をこの順序で積層し、この積層物を負極が外側に位置するように渦巻き状に巻回することにより電極群を作製した。この電極群にリードを取り付けて有底円筒状の容器（電池缶）に収容し、さらに非水電解液を封入することにより、円筒形リチウムイオン二次電池を組立てた。なお、非水電解液は、エチレンカーボネートとメチルエチルカーボネートの 1:1 混合溶媒に 1mol/L の濃度で  $\text{LiPF}_6$  を溶解して調製した。

このようにして作製した実施例および比較例の円筒形リチウムイオン二次電池の特性を以下のようにして測定、評価した。その結果を表 2 に示す。

#### 〔初期充電時の電圧低下〕

組立てた電池の初めての充電時に、20℃の環境の下で 1A の電流制限を設けて 4.2V の定電圧充電を 5 時間行った。これを 10 日間室温で保存した後に電圧を測定し、その際の電圧降下を調べた。

#### 〔サイクル特性評価〕

20℃の環境の下で、1Aの電流制限を設けて4.2Vの定電圧充電を5時間行い、1時間の休止の後、2.7Vまで1Aで放電を行った。さらに1時間休止させた後に、上記した条件で充電を行った。このサイクルを300回繰り返し行い、初期の放電容量 (Cap(1st)) と300回目の放電容量 (Cap(300th)) の比 (Cap(300th)/Cap(1st)) を測定した。

#### [放電容量]

上記したサイクル特性を評価する際の第1回目の放電時の放電容量を、使用した活物質の量(10g)で割り、活物質単位重さ当りの放電容量を求めた。

#### [工程不良数]

電極製造工程の不良数を、塗工ヘッドの目詰まり回数を指標として調べた。

表 2

	電圧降下 (V)	容量維持率 (%)	放電容量 (mAh/g)	工程不良数
実施例 1 (分級前)	0.01	85	145	0 回/日
比較例 1 (分級後)	0.20	70	138	5 回/日

表 2 から明らかなように、分級を実施した正極活物質を用いた実施例 1 のリチウムイオン二次電池は、電池性能に優れるだけでなく、工程不良の発生回数も少ないことが分かる。

#### 実施例 2

実施例 1 と同様にして正極活物質 (Sn 含有 LiCoO<sub>2</sub> 粉末) を作製した。この際、分級条件を変更することによって、粗大粒子や高密度粒子の除去条件が異なる 12 種類の試料を得た。これら各試料から分析用サンプルを抽出し、それぞれ不純物量の測定を以下のようにして行っ

た。さらに、各試料を用いて実施例 1 と同様にリチウムイオン二次電池を作製し、実施例 1 と同一条件で電圧降下を測定した。これらの結果を表 3 に示す。

不純物量の測定は、まず各サンプルの一部を王水で加熱溶解し、このサンプルを全量溶解した液中の Fe 量、Zn 量、Cu 量を ICP 分析により測定した。この分析結果は正極活物質中の Fe、Zn、Cu の各不純物の全量を示すものである。

次に、各サンプルの残部をシュウ酸溶液（10%）で溶解し、この溶液をろ過した後に、ろ液中の Fe 量、Zn 量、Cu 量を ICP 分析により測定した。この分析結果は正極活物質中に金属粒子として存在する Fe、Zn、Cu の各不純物量を示すものである。この分析結果は請求項 1 の正極活物質中の高密度粒子の含有比率に相当する。

表 3

	試料 No	Fe 成分分析		Zn 成分分析		Cu 成分分析		電圧降下 (mV)
		全量 (ppm)	シュウ酸可溶成分 (ppm)	全量 (ppm)	シュウ酸可溶成分 (ppm)	全量 (ppm)	シュウ酸可溶成分 (ppm)	
実施例 2	1	110	10	16	0.1	8	0.3	10
	2	120	20	24	0.2	6	0.1	20
	3	200	18	13	0.4	7	0.1	20
	4	210	12	20	0.3	5	0.2	40
	5	130	15	17	0.1	10	0.1	10
	6	120	10	12	0.2	8	0.3	20
	7	130	90	21	0.2	9	0.4	680
	8	80	12	18	5	8	0.5	550
	9	130	10	16	0.6	10	4	1100
比較例 2	10	800	500	400	300	500	400	4200
	11	600	500	300	300	400	300	4200
	12	1300	1000	500	400	300	300	4200

表 3 から明らかなように、シュウ酸可溶成分が多いと、二次電池の電圧降下が大きいことが分かる。Fe については、10~20ppm 程度のシュウ酸可溶成分量（金属性不純物量）では電圧降下はほとんど生じな

いが、シュウ酸可溶成分が 90ppm 程度存在すると電圧降下が大きくなる。Cu および Zn 成分については、数 ppm 程度のシュウ酸可溶成分を含んでいても電圧降下が起こる。

### 実施例 3

まず、炭酸リチウムと酸化コバルト ( $\text{Co}_3\text{O}_4$ ) とを、Li : Co の原子比が 1:1 となるように混合し、空気中にて  $900^\circ\text{C}$  で 5 時間焼成して、正極活物質である  $\text{LiCoO}_2$  を合成した。次いで、得られた  $\text{LiCoO}_2$  を粉砕機で平均粒径が  $5\mu\text{m}$  程度になるまで粉砕した。粉砕後の  $\text{LiCoO}_2$  粉末を乾式の遠心式分級装置にかけ、 $\text{LiCoO}_2$  粉末から粒子状の金属性不純物（高密度粒子）を分離除去した。

遠心式分級装置の原料投入口から供給された  $\text{LiCoO}_2$  粉末は、空気の流れに乗って付属の分散エリアで十分に分散された後、分級エリアに送り込まれる。ここで、 $\text{LiCoO}_2$  粉末は分級ロータの回転流による遠心力と接線方向から中心部に向かって流れる空気流の抵抗を受ける。粗粒子はより遠心力に影響され、微粒子はより空気抵抗に影響される。金属不純物粒子などは遠心力により分級ロータの外に飛ばされ、捕集用サイクロンを経て粗粒子回収部で回収される。適正な粒径を有する  $\text{LiCoO}_2$  粒子は、空気流と共にロータの内部側に送り込まれ、捕集用サイクロンを経て微粒子回収部で回収される。

上記したような乾式分級装置において、分級点は空気流量を一定にしてロータ回転数を調整することにより容易に制御することができる。この実施例では分級点を  $15\mu\text{m}$  に調整し、 $\text{LiCoO}_2$  粉末中に含まれる金属不純物粒子などを分離、回収した。

分級後の正極活物質 ( $\text{LiCoO}_2$ ) 中の不純物量（全量）を ICP 法で分析したところ、Fe 200ppm 以下、Cu 50ppm 以下、Zn 20ppm 以下、Ni 400ppm 以下、Mn 40ppm 以下であった。また、活物質粉末

に粒径  $10\mu\text{m}$  の Cu 粒子、粒径  $10\mu\text{m}$  の Fe 粒子を数 100ppm 添加し、上記した分級条件と同一条件で分級したところ、ほぼ全ての Cu 粒子および Fe 粒子が粗粒子回収部に回収された。このことは、上記した分級条件で  $10\mu\text{m}$  以上の金属不純物粒子が除去されていることを示している。

次に、微粒子回収部に回収された正極活物質 ( $\text{LiCoO}_2$ ) を用いて、以下のようにしてリチウムイオン二次電池を作製した。

まず、正極活物質 91 質量%と導電剤としてアセチレンブラック 2.7 質量%およびグラファイト 2.7 質量%と結着剤としてフッ素樹脂 3.6 質量%とを混合して正極合剤を調製した。この正極合剤を N-メチル-2-ピロリドンに分散させてスラリー状とし、これをアルミニウム箔の両面に塗布、乾燥させた後、ローラープレス機で片面の厚さが  $100\mu\text{m}$  となるように圧縮成形した。これを所定のサイズに裁断することによって、シート状の正極を得た。

次に、平均繊維径  $10\mu\text{m}$ 、平均繊維長  $18\mu\text{m}$  のメソフェーズピッチ系炭素繊維 90 質量%に、炭素系導電性フィラー 7 質量%とゴム系結着剤であるスチレンブタジエンゴム (SBR) 3 質量%を混合して負極合剤を調製した。この負極合剤を溶媒中に懸濁させてスラリー状とし、これを銅箔の両面に塗布、乾燥させた後、ローラープレス機で片面の厚さが  $100\mu\text{m}$  となるように圧縮成形した。これを所定のサイズに裁断することによって、シート状の負極を得た。

上述したシート状の正極と負極を用いて、実施例 1 と同様にして円筒形リチウムイオン二次電池を組立てた。この二次電池について、 $20^\circ\text{C}$  の環境の下で 4.2V まで定電流 (1600mA) で充電し、さらに 4.2V の定電圧充電を 3 時間行った。これを 1 週間室温で保存した後に電圧を測定した。その際の電圧降下を調べた。電圧降下が 80mV 以上のものは

不良品とし、初期充電時の電圧低下不良の発生率を調べた。その結果を表 4 に示す。

#### 実施例 4

金属不純物粒子を除去する工程を、正極活物質に導電剤と結着剤を添加、混合した後に実施する以外は、実施例 3 と同様にして正極を作製した。さらに、この正極を用いて、実施例 3 と同様なリチウムイオン二次電池を作製した。このようなりチウムイオン二次電池について、実施例 3 と同様にして、初期充電時の電圧低下不良の発生率を調べた。その結果を表 4 に示す。

#### 実施例 5

金属不純物粒子を除去する工程において、分級前に予め凝集粒子をジェットミルで粉碎する以外は、実施例 3 と同様にして正極を作製した。さらに、この正極を用いて、実施例 3 と同様なリチウムイオン二次電池を作製した。このようなりチウムイオン二次電池について、実施例 3 と同様にして、初期充電時の電圧低下不良の発生率を調べた。その結果を表 4 に示す。

#### 実施例 6

金属不純物粒子を除去する工程において、粗粒子側回収部に回収された粒子を分級点  $15\mu\text{m}$  で再分級し、粒子径の大きい活物質粒子を取り出す以外は、実施例 3 と同様にして正極を作製した。さらに、この正極を用いて、実施例 3 と同様なリチウムイオン二次電池を作製した。このようなりチウムイオン二次電池について、実施例 3 と同様にして、初期充電時の電圧低下不良の発生率を調べた。その結果を表 4 に示す。

#### 比較例 3

分級による不純物粒子の分離を実施しない以外は、実施例 3 と同様にして正極を作製した。さらに、この正極を用いて、実施例 3 と同様なリ

チウムイオン二次電池を作製した。このようなりチウムイオン二次電池について、実施例 3 と同様にして、初期充電時の電圧低下不良の発生率を調べた。その結果を表 4 に示す。

表 4

	分級後の 活物質回収率 (%)	初期充電による 電圧低下不良率 (%)
実施例 3	97	0.7
実施例 4	96	0.7
実施例 5	97	0.5
実施例 6	99	0.7
比較例 3	(分級無し)	10.0

表 4 から明らかなように、分級後の正極活物質を用いた各実施例のチウムイオン二次電池は、分級を実施していない比較例 3 に比べて、初期充電時の電圧低下不良の発生率が大幅に低下していることが分かる。

#### 実施例 7

この実施例では、本発明の再生方法を二次電池用正極活物質の再生に適用した例について述べる。

実施例 1 における正極の製造工程において、大量の正極屑（廃電極）が発生する。具体的には、塗工工程後の裁断時に生じる裁断屑や、所定の厚さに塗るための条件出しなどに使用した正極屑である。この正極屑から以下のようにして正極活物質を回収、再生した。

まず、正極屑をシュレッダにかけて 100×100mm 以下の小片にした。これを箱型熱処理炉にて 400℃で熱処理した。この熱処理で Al 箔から塗膜が剥がれるため、篩により両者を分離した。次に、Al が除かれた正極屑をさらに 600℃で熱処理（ロータリーキルン使用）することによって、結合剤成分およびカーボン成分を燃焼除去して、粉末状の正極活物質のみを取り出した。



さらに、上記した正極活物質に対して、気流式分級装置を用いて分級処理を施した。この際、分級装置の運転条件を適宜選ぶことによって、除去される粗大粒子、高密度粒子、微小粒子、低密度粒子の量、粒径、密度を制御した。粒度分布は前述した方法により測定した。

このようにして得た再生正極活物質を使用して、実施例 1 と同様にしてリチウムイオン二次電池を作製した。また、比較例 4 として、分級装置による粗大粒子、高密度粒子、微小粒子、低密度粒子の分離除去工程を実施しない以外は、この実施例 7 と同様に正極屑から回収、再生した再生正極活物質を用いて、同様にリチウムイオン二次電池を作製した。なお、実施例 7 および比較例 4 による各リチウム-コバルト複合酸化物を、それぞれ  $\text{Cu K } \alpha$  線による粉末 X 線回析法で測定したところ、いずれも  $\text{Li Co O}_2$  の回析パターンとほぼ一致した。

このようにして作製した実施例 7 および比較例 4 の各円筒形リチウムイオン二次電池の特性を、実施例 1 と同様にして測定、評価した。特性の評価結果を図 7 ～ 図 10 に示す。図 7 は再生正極活物質中の粒径  $30 \mu\text{m}$  以上の粗大粒子の含有比率（体積比）と電圧降下との関係を示している。図 8 は再生正極活物質中の密度  $7 \text{ g/cm}^3$  以上の高密度粒子の含有比率（質量比）と電圧降下との関係、図 9 は再生正極活物質中の粒径  $0.5 \mu\text{m}$  以下の微小粒子の含有比率（体積比）と容量維持率との関係、図 10 は再生正極活物質中の密度  $2.5 \text{ g/cm}^3$  以下の低密度粒子の含有比率（質量比）と放電容量との関係を示している。

図 7 から明らかなように、粗大粒子が多い正極活物質を使用した電池では電圧降下が激しく、電池の中でショートしていることが分かる。図 8 からは、高密度粒子が多い正極活物質を使用した電池では電圧降下が激しく、電池の中でショートしていることが分かる。さらに、図 9 からは微小粒子が多いと容量維持率が悪化することが、図 10 からは低密度

粒子が多いと放電容量が小さくなることが分かる。

#### 実施例 8

この実施例では、本発明の再生方法を蛍光体粉末の再生に適用した例について述べる。

カラーブラウン管のガラスパネルに蛍光膜を形成する工程で回収した蛍光体スラリーを攪拌槽に投入した。この蛍光体スラリーは赤色蛍光体  $Y_2O_2S : Eu$  と共に他の添加物質や不純物を含むものである。攪拌槽に脱イオン水を加えて攪拌し、蛍光体スラリーを水中に十分に分散させた後、これを 100 メッシュのナイロン布に通して異物を除去した。次いで、このスラリーを沈降させて水相を系外に除去した後、以下の処理を順に行った。

まず、上記スラリーを攪拌槽に移し、脱イオン水と塩素分 5% の次亜塩素酸ナトリウム水溶液とを加えて攪拌し、スラリー中に存在するクロム化合物を酸化分解した。この後、脱イオン水による水洗を 3 回繰り返した。次いで、80℃の脱イオン水と過ヨウ素酸カリウムとを加えて攪拌し、スラリー中に存在するポリビニルアルコールを酸化分解した。静置してスラリーを沈降させた後、水相を系外に除去した。

次に、攪拌槽に残ったスラリーに脱イオン水とアンモニア水とを加えて攪拌した後、10 時間静置してスラリーを沈降させた。この後、上澄み液をその中に浮遊するカーボンと共に系外に除去した。

攪拌槽に残ったスラリーに 70℃の温水と 35% 塩酸水溶液とを加えて攪拌した。この後、静置してスラリーを沈降させ、水相を系外に除去した後、脱イオン水による水洗を 2 回繰り返した。これに脱イオン水と濃硝酸とを加えて攪拌した後、静置してスラリーを沈降させ、水相を系外に除去した。さらに、脱イオン水による水洗をスラリーの pH が 5.5 以上になるまで繰り返した。この後、水洗したスラリーをろ過し、固形

分を取り出した後、乾燥して赤色蛍光体粉末を得た。

得られた赤色蛍光体粉末に対して、気流式分級装置を用いて分級処理を施した。この際、分級装置の運転条件を適宜選ぶことによって、除去される粗大粒子、高密度粒子、微小粒子、低密度粒子の量、粒径、密度を制御した。

上述した分級処理を施した数種類の赤色蛍光体粉末、および分級処理を施さない以外は同様に再生した赤色蛍光体粉末（比較例5）を用いて、それぞれ常法にしたがってドットタイプの蛍光膜を形成した。このようにして得た各蛍光膜の特性を以下のようにして評価した。

まず、再生赤色蛍光体粉末中の粒径  $30\mu\text{m}$  以上の粗大粒子の含有比率（体積比）と蛍光膜のドット落ち量との関係、さらに再生赤色蛍光体粉末中の密度  $7\text{g}/\text{cm}^3$  以上の高密度粒子の含有比率（質量比）と蛍光膜のドット落ち量との関係を調べた。ドット落ち量は、露光・現像工程で未露光部分を除去する際に、本来残るべき蛍光体ドットに対する欠落した部分の比率（面積）で示す。これらの結果を図11および図12に示す。これらの図から明らかなように、再生赤色蛍光体粉末中から粒径  $30\mu\text{m}$  以上の粗大粒子や密度  $7\text{g}/\text{cm}^3$  以上の高密度粒子を分離除去することによって、高品質の蛍光膜を得ることが可能となる。

次に、再生赤色蛍光体粉末中の粒径  $0.5\mu\text{m}$  以下の微小粒子の含有比率（体積比）と蛍光膜の発光輝度との関係、さらに再生赤色蛍光体粉末中の密度  $2.5\text{g}/\text{cm}^3$  以下の低密度粒子の含有比率（質量比）と蛍光膜の発光輝度との関係を調べた。これらの結果を図13および図14に示す。これらの図から明らかなように、再生赤色蛍光体粉末中から粒径  $0.5\mu\text{m}$  以下の微小粒子や密度  $2.5\text{g}/\text{cm}^3$  以下の低密度粒子を分離除去する工程を実施することによって、高輝度の蛍光膜が得られることが可能となる。

## 実施例 9

ここでは蛍光体粉末の製造例について述べる。

まず、5 質量%のEuを添加した酸化イットリウム共沈原料 100g、硫黄 50g および融剤として炭酸ナトリウム 50g を混合し、この混合物を  $1100^{\circ}\text{C} \times 6$  時間焼成することによって、 $\text{Y}_2\text{O}_2\text{S} : \text{Eu}$  蛍光体を合成した。

焼成後、余剰となる  $\text{Na}_2\text{S}$  などを水洗で完全に除去し、乾燥した。この蛍光体粉末に対して気流式分級装置を用いて分級処理を施した。この際、分級装置の運転条件を適宜選ぶことによって、粗大粒子塊として粒径  $30\mu\text{m}$  以上の粒子、また微小粒子として粒径  $0.5\mu\text{m}$  以下の粒子を除去した。

上述した分級処理を施した赤色蛍光体粉末（実施例 9）、および分級処理に代えて目開き  $70\mu\text{m}$  の金属網を用いた篩分けを行う以外は実施例 9 と同様にして作製した赤色蛍光体粉末（比較例 6）をそれぞれ用いて、常法にしたがってドットタイプの蛍光膜を形成した。このようにして得た各蛍光膜の特性を評価した。

その結果、分級処理により粒径  $30\mu\text{m}$  以上の粗大粒子を除去した蛍光体粉末によれば、ドット落ち量が減少することが確認された。また、粒径  $0.5\mu\text{m}$  以下の粒子を除去することによって、蛍光膜の発光輝度が向上することが確認された。もちろん非発光物である異物などを除去することによっても発光輝度が向上する。これらによって、高品質の蛍光膜を再現性よく得ることが可能となる。

## 産業上の利用可能性

以上の実施形態からも明らかなように、本発明の二次電池用正極活物質は、電池性能や製造歩留りを低下させる粗大粒子や高密度粒子など

を除去しているため、非水電解液二次電池の製造歩留りおよび電池性能の向上に大きく寄与するものである。また、本発明の二次電池用正極活物質の製造方法によれば、そのような高性能の正極活物質を安価にかつ効率よく製造することができる。

本発明の電子機能材料の再生方法は、従来の物理再生では分離が困難であった、異物、不純物、微粉、凝集粗大塊などを確実にかつ工業的に分離除去することを可能にしたものである。従って、物理再生による処理コストの低減効果を十分に発揮した上で、高品質の再生電子機能材料を再現性よく得ることができる。

## 請 求 の 範 囲

1. ☒ 非水電解液二次電池に用いられる金属酸化物からなる正極活物質であって、前記金属酸化物の平均粒径に対して粒径が 600% 以上の粗大粒子の含有比率が体積比で 1% 以下であり、かつ前記金属酸化物の平均密度に対して密度が 150% 以上の高密度粒子の含有比率が質量比で 1000ppm 以下であることを特徴とする二次電池用正極活物質。

2. 請求項 1 記載の二次電池用正極活物質において、

前記粗大粒子は前記正極活物質の凝集体、前記正極活物質と他材料との結合体および不純物粒子から選ばれる少なくとも 1 種の粒子であり、かつ前記高密度粒子は粒子状の金属性不純物であることを特徴とする二次電池用正極活物質。

3. 請求項 1 記載の二次電池用正極活物質において、

前記金属酸化物の平均粒径に対して粒径が 400% 以上の粗大粒子の含有比率が体積比で 1% 以下であり、かつ前記金属酸化物の平均密度に対して密度が ~~150%~~ 150% 以上の高密度粒子の含有比率が質量比で 100ppm 以下であることを特徴とする二次電池用正極活物質。

4. 請求項 1 記載の二次電池用正極活物質において、

さらに、前記金属酸化物の平均粒径に対して粒径が 15% 以下の微小粒子の含有比率が体積比で 1% 以下であり、かつ前記金属酸化物の平均密度に対して密度が 50% 以下の低密度粒子の含有比率が質量比で 1000ppm 以下であることを特徴とする二次電池用正極活物質。

5. 請求項 1 記載の二次電池用正極活物質において、

前記正極活物質は、コバルト、ニッケルおよびマンガンから選ばれる少なくとも 1 種とリチウムとを含む複合金属酸化物からなることを特

徴とする二次電池用正極活物質。

6. 請求項5記載の二次電池用正極活物質において、

前記正極活物質中の不純物元素量は、鉄が200ppm以下、銅が50ppm以下、亜鉛が30ppm以下、ニッケルが400ppm以下、マンガンが40ppm以下であることを特徴とする二次電池用正極活物質。

7. 非水電解液二次電池に用いられる金属酸化物からなる正極活物質であって、粒径が $30\mu\text{m}$ 以上の粗大粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ密度が $7\text{g}/\text{cm}^3$ 以上の高密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であることを特徴とする二次電池用正極活物質。

8. 請求項7記載の二次電池用正極活物質において、

さらに、粒径が $0.5\mu\text{m}$ 以下の微小粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、密度が $2.5\text{g}/\text{cm}^3$ 以下の低密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であることを特徴とする二次電池用正極活物質。

9. 二次電池用正極活物質の原料粉末を所望の比率で混合し、この混合物を焼成して粉体状の正極活物質を製造するにあたり、

前記粉体状正極活物質を構成する粒子の粒径または密度に基づく抵抗力の差を利用して、前記粉体状正極活物質から粗大粒子と高密度粒子を同時に分離除去する工程を実施することを特徴とする二次電池用正極活物質の製造方法。

10. 請求項9記載の二次電池用正極活物質の製造方法において、

前記粉体状正極活物質の平均粒径に対して粒径が250%以上の前記粗大粒子、および前記粉体状正極活物質の平均密度に対して密度が120%以上の前記高密度粒子が同時に取り除かれるように、前記分離除去工程を実施することを特徴とする二次電池用正極活物質の製造方法。

11. 請求項9記載の二次電池用正極活物質の製造方法において、

前記正極活物質の凝集体、前記正極活物質と他材料との結合体および

不純物粒子から選ばれる少なくとも 1 種の前記粗大粒子と、粒子状の金属性不純物からなる前記高密度粒子を、前記分離除去工程で同時に前記粉体状正極活物質から取り除くことを特徴とする二次電池用正極活物質の製造方法。

12. 請求項 9 記載の二次電池用正極活物質の製造方法において、<sup>のりれと 40d/k (7-4 132)</sup>

前記粗大粒子および前記高密度粒子の分離除去工程を、分級装置を用いて実施することを特徴とする二次電池用正極活物質の製造方法。

13. 請求項 9 記載の二次電池用正極活物質の製造方法において、

さらに、前記粉体状正極活物質の平均粒径に対して粒径が 50% 以下の微小粒子、および前記粉体状正極活物質の平均密度に対して密度が 75% 以下の低密度粒子を、前記粉体状正極活物質から同時に取り除くように、前記分離除去工程を実施することを特徴とする二次電池用正極活物質の製造方法。

13  
(補正)  
追加  
14. Li 含有複合金属酸化物からなり、かつ前記複合金属酸化物の平均粒径に対して粒径が 600% 以上の粗大粒子の含有比率が体積比で 1% 以下であり、かつ前記複合金属酸化物の平均密度に対して密度が 150% 以上の高密度粒子の含有比率が質量比で 1000ppm 以下である正極活物質を含有する正極と、

前記正極とセパレータを介して配置された負極と、

前記正極、前記セパレータおよび前記負極を収納する電池容器と、

前記電池容器内に充填された非水電解液と

を具備することを特徴とする非水電解液二次電池。

15. Li 含有複合金属酸化物からなり、かつ粒径が  $30\mu\text{m}$  以上の粗大粒子の含有比率が体積比で 1% 以下であり、かつ密度が  $7\text{g/cm}^3$  以上の高密度粒子の含有比率が質量比で 1000ppm 以下である正極活物質を含有する正極と、



前記正極とセパレータを介して配置された負極と、

前記正極、前記セパレータおよび前記負極を収納する電池容器と、

前記電池容器内に充填された非水電解液と

を具備することを特徴とする非水電解液二次電池。

16. 電子部品の製造工程で生じた廃材または廃電子部品から回収、再生した粉体状の再生電子機能材料であって、

前記粉体の平均粒径に対して粒径が600%以上の粗大粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ前記粉体の平均密度に対して密度が150%以上の高密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であることを特徴とする再生電子機能材料。

17. 請求項16記載の再生電子機能材料において、

さらに、前記粉体の平均粒径に対して粒径が15%以下の微小粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ前記粉体の平均密度に対して密度が50%以下の低密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であることを特徴とする再生電子機能材料。

18. 電子部品の製造工程で生じた廃材または廃電子部品から回収、再生した粉体状の再生電子機能材料であって、

前記粉体の平均粒径に対して粒径が15%以下の微小粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ前記粉体の平均密度に対して密度が50%以下の低密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であることを特徴とする再生電子機能材料。

19. 請求項16記載の再生電子機能材料において、

前記再生電子機能材料は再生正極活物質または再生蛍光体であることを特徴とする再生電子機能材料。

20. 電子部品の製造工程で生じた廃材または廃電子部品から電子機能材料を回収する工程と、前記回収した電子機能材料を精製して、粉体

状の電子機能材料を再生する工程とを有する電子機能材料の再生方法において、

前記回収した電子機能材料を精製する過程で、前記粉体状電子機能材料を構成する粒子の粒径および密度に基づく抵抗力の差を利用して、前記粉体状電子機能材料から粗大粒子および高密度粒子を同時に分離除去する工程を実施することを特徴とする電子機能材料の再生方法。

21. 請求項20記載の電子機能材料の再生方法において、

前記粉体状電子機能材料の平均粒径に対して粒径が250%以上の前記粗大粒子、および前記粉体状電子機能材料の平均密度に対して密度が120%以上の前記高密度粒子が同時に取り除かれるように、前記分離除去工程を実施することを特徴とする電子機能材料の再生方法。

22. 請求項20記載の電子機能材料の再生方法において、

前記電子機能材料の凝集体、前記電子機能材料と他材料との結合体および不純物粒子から選ばれる少なくとも1種の前記粗大粒子と、粒子状の金属性不純物からなる前記高密度粒子を、前記分離除去工程で同時に前記粉体状電子機能材料から取り除くことを特徴とする電子機能材料の再生方法。

23. 請求項20記載の電子機能材料の再生方法において、

前記粗大粒子および前記高密度粒子の分離除去工程を、分級操作により実施することを特徴とする電子機能材料の再生方法。

24. 請求項20記載の電子機能材料の再生方法において、

さらに、前記粉体状電子機能材料の平均粒径に対して粒径が50%以下の微小粒子、および前記粉体状電子機能材料の平均密度に対して密度が75%以下の低密度粒子を、前記粉体状電子機能材料から同時に取り除くように、前記分離除去工程を実施することを特徴とする電子機能材料の再生方法。

25. 請求項20記載の電子機能材料の再生方法において、

二次電池の製造工程で生じた廃電極または廃二次電池から正極活物質を回収する工程と、前記回収した正極活物質を精製して、粉体状の正極活物質を再生する工程とを有することを特徴とする電子機能材料の再生方法。

26. 請求項20記載の電子機能材料の再生方法において、

電子管の製造工程で生じた余剰の蛍光体スラリーまたは廃電子管から蛍光体を回収する工程と、前記回収した蛍光体を精製して、蛍光体粉末を再生する工程とを有することを特徴とする電子機能材料の再生方法。

27. 電子部品の製造工程で生じた廃材または廃電子部品から電子機能材料を回収する工程と、前記回収した電子機能材料を精製して、粉体状の電子機能材料を再生する工程とを有する電子機能材料の再生方法において、

前記回収した電子機能材料を精製する過程で、前記粉体状電子機能材料を構成する粒子の粒径または密度に基づく抵抗力の差を利用して、前記粉体状電子機能材料から微小粒子および低密度粒子を同時に分離除去する工程を実施することを特徴とする電子機能材料の再生方法。

28. 請求項27記載の電子機能材料の再生方法において、

前記粉体状電子機能材料の平均粒径に対して粒径が50%以下の前記微小粒子、および前記粉体状電子機能材料の平均密度に対して密度が75%以下の前記低密度粒子が同時に取り除かれるように、前記分離除去工程を実施することを特徴とする電子機能材料の再生方法。

29. 請求項27記載の電子機能材料の再生方法において、

前記微小粒子および前記低密度粒子の分離除去工程を、分級装置を用いて実施することを特徴とする電子機能材料の再生方法。



FIG. 1

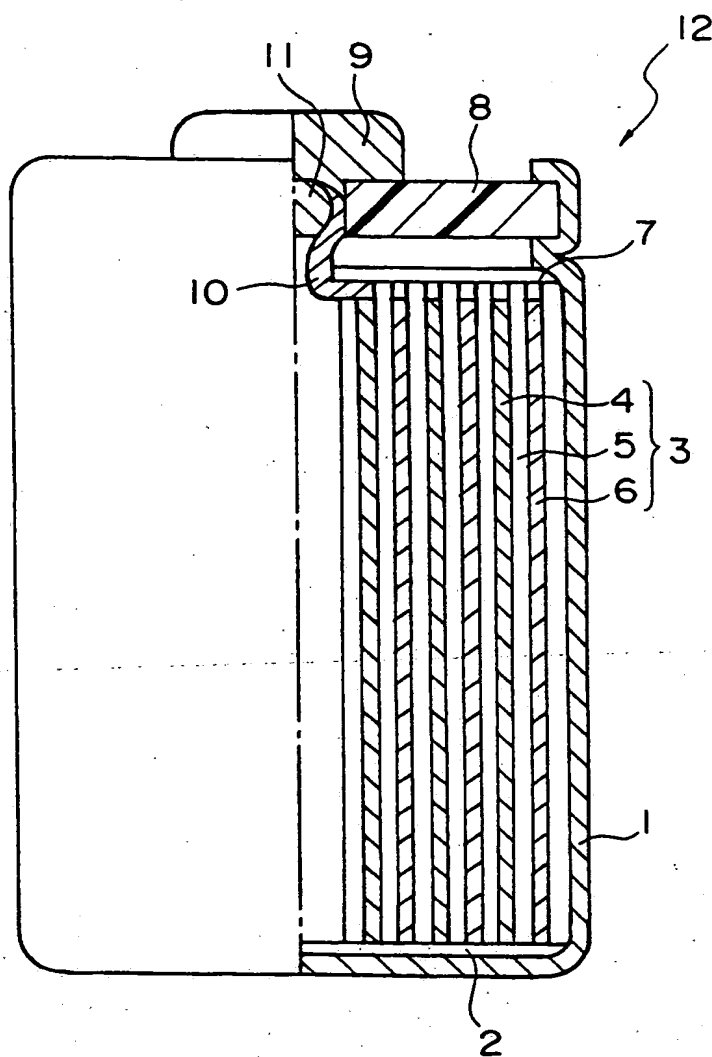
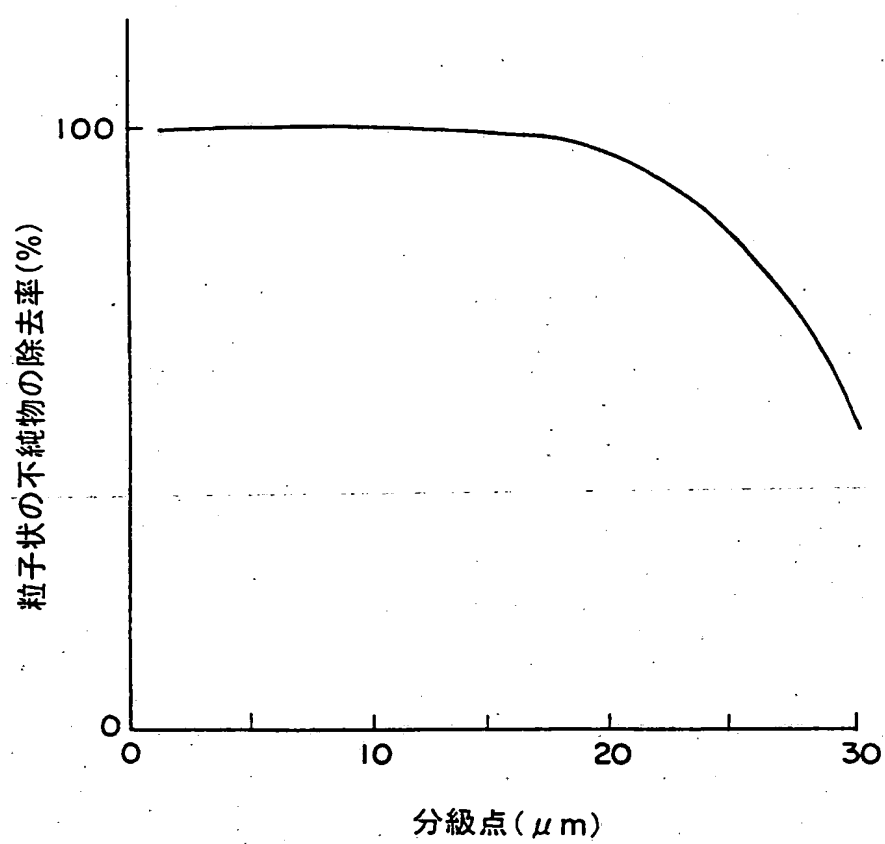




FIG. 2



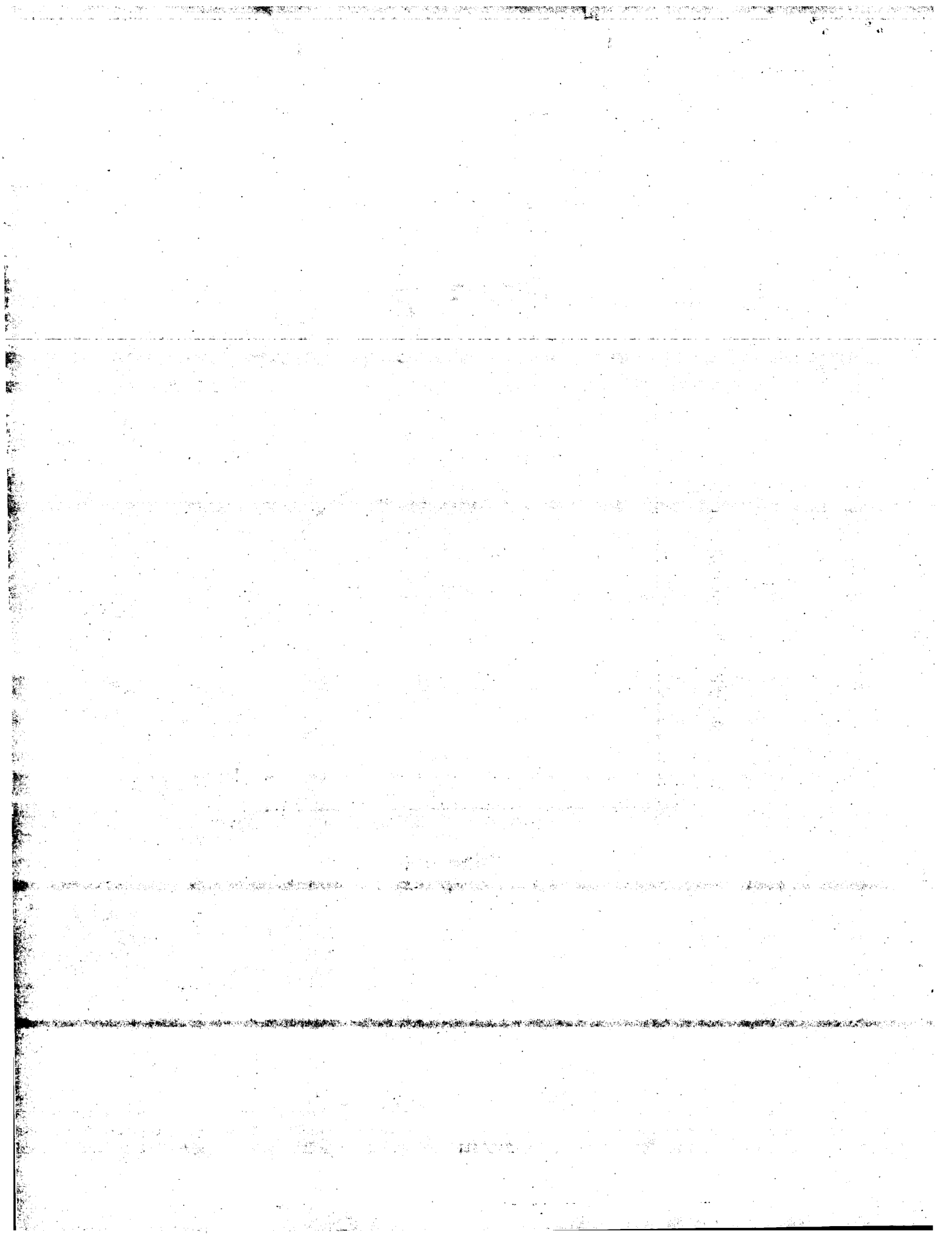
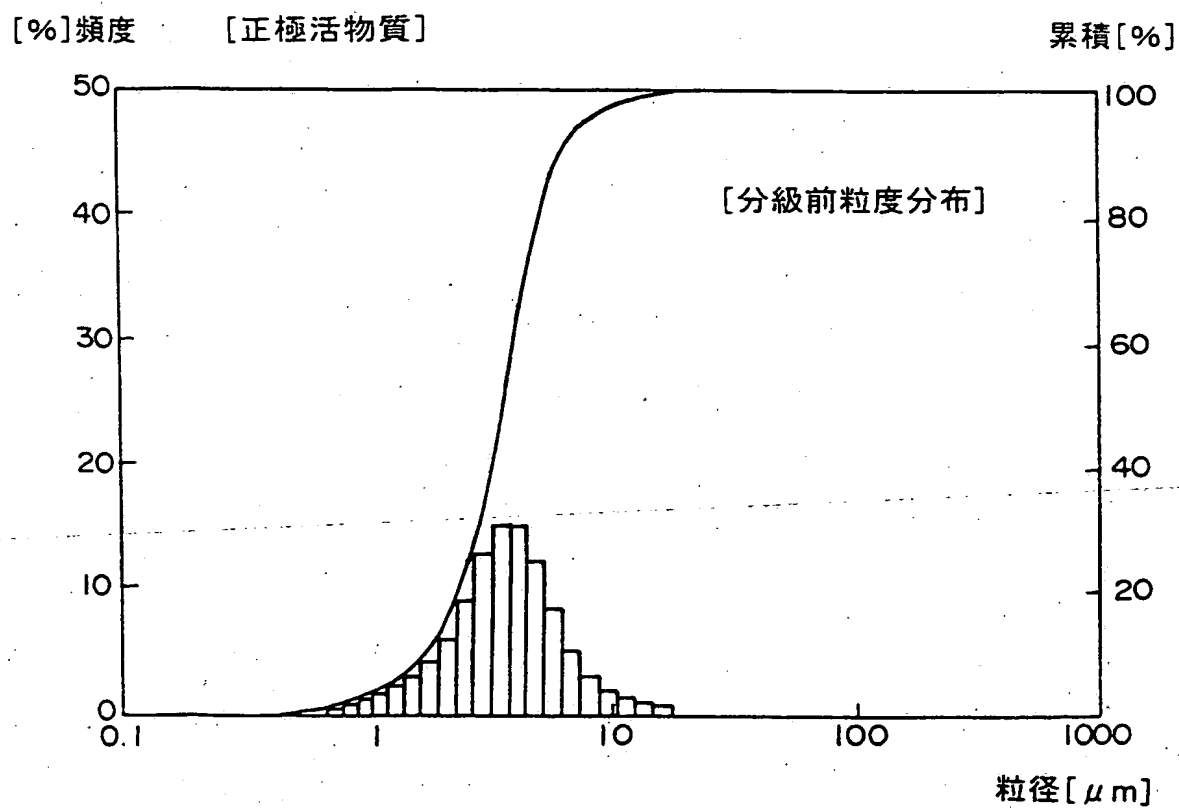




FIG. 3



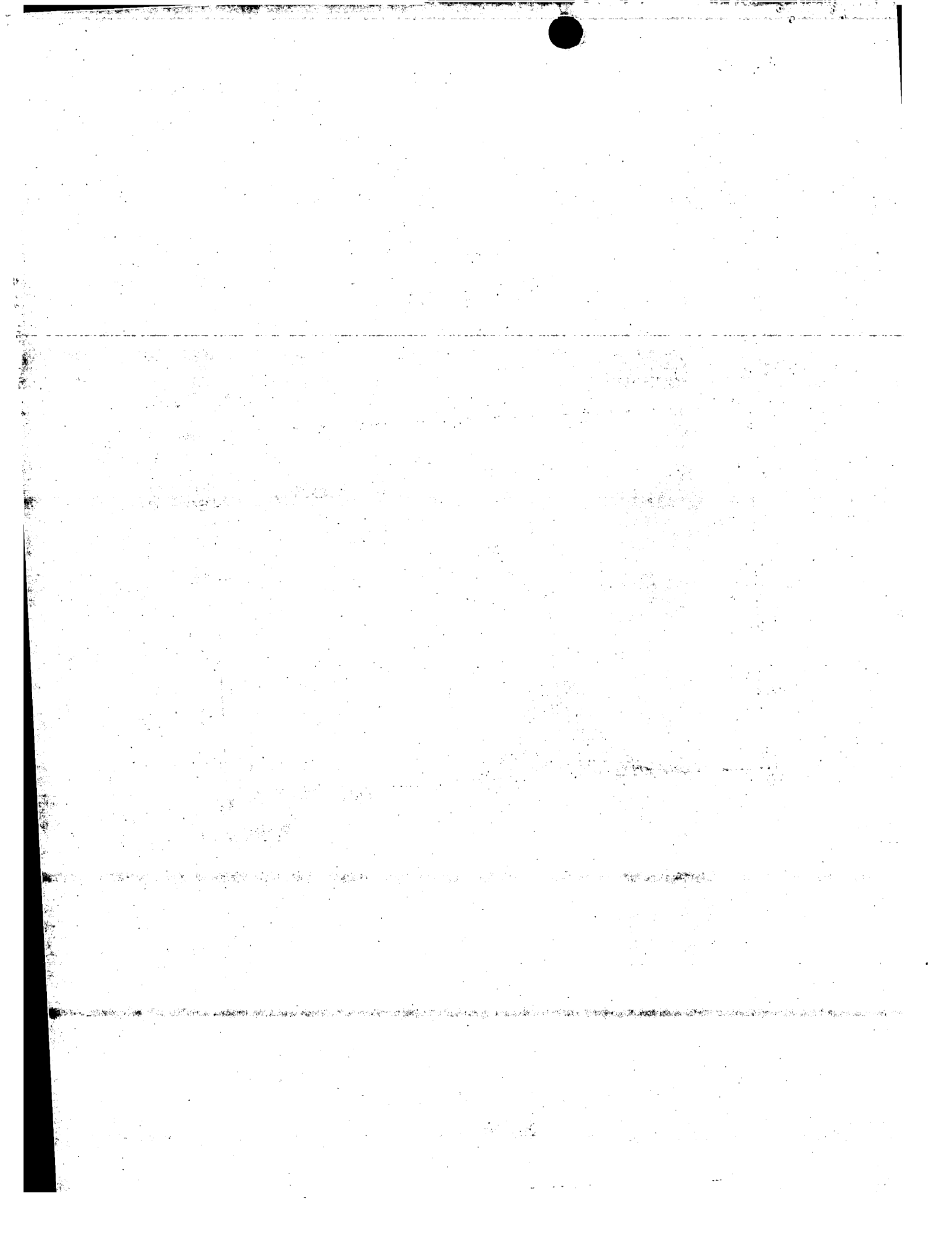


FIG. 4

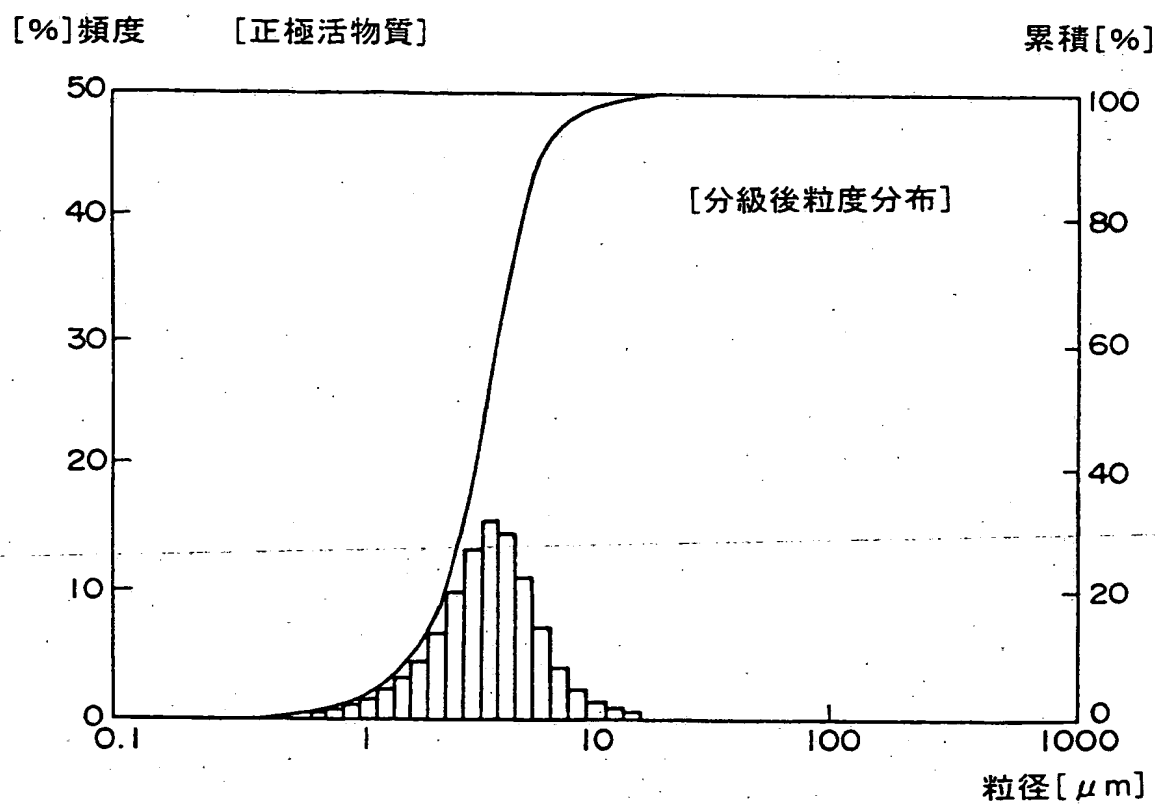
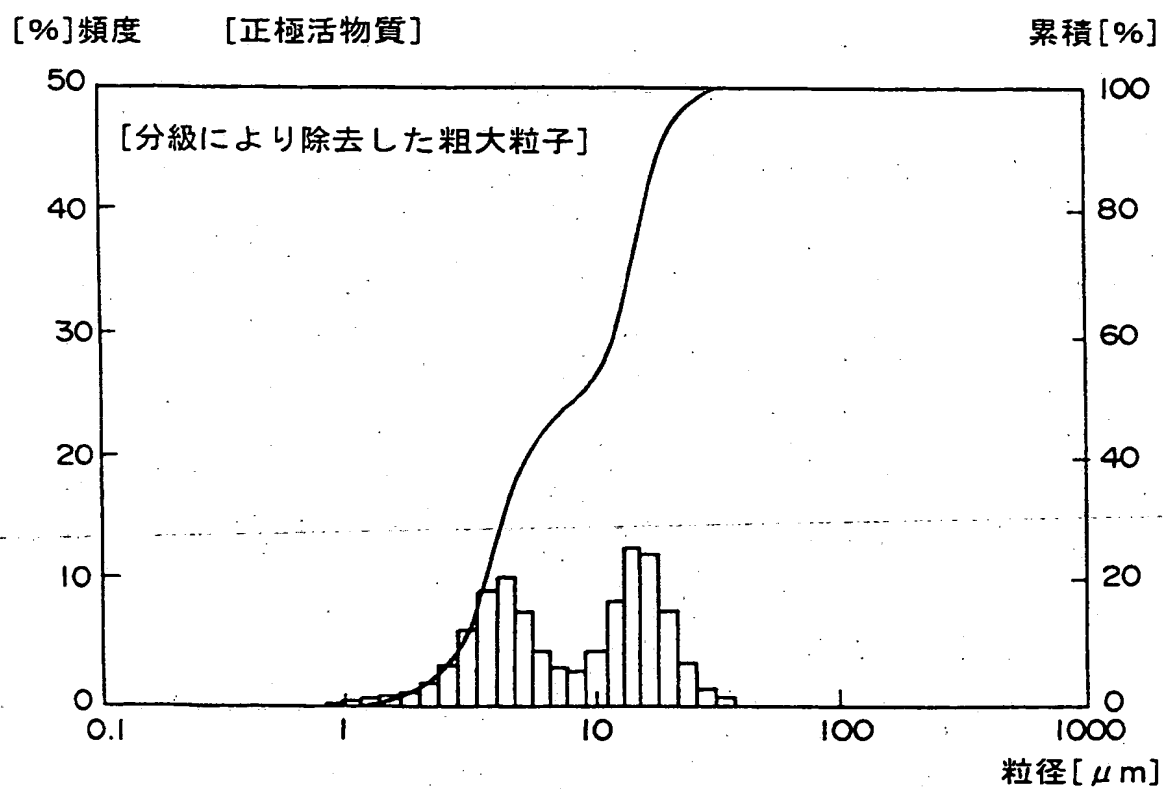




FIG. 5



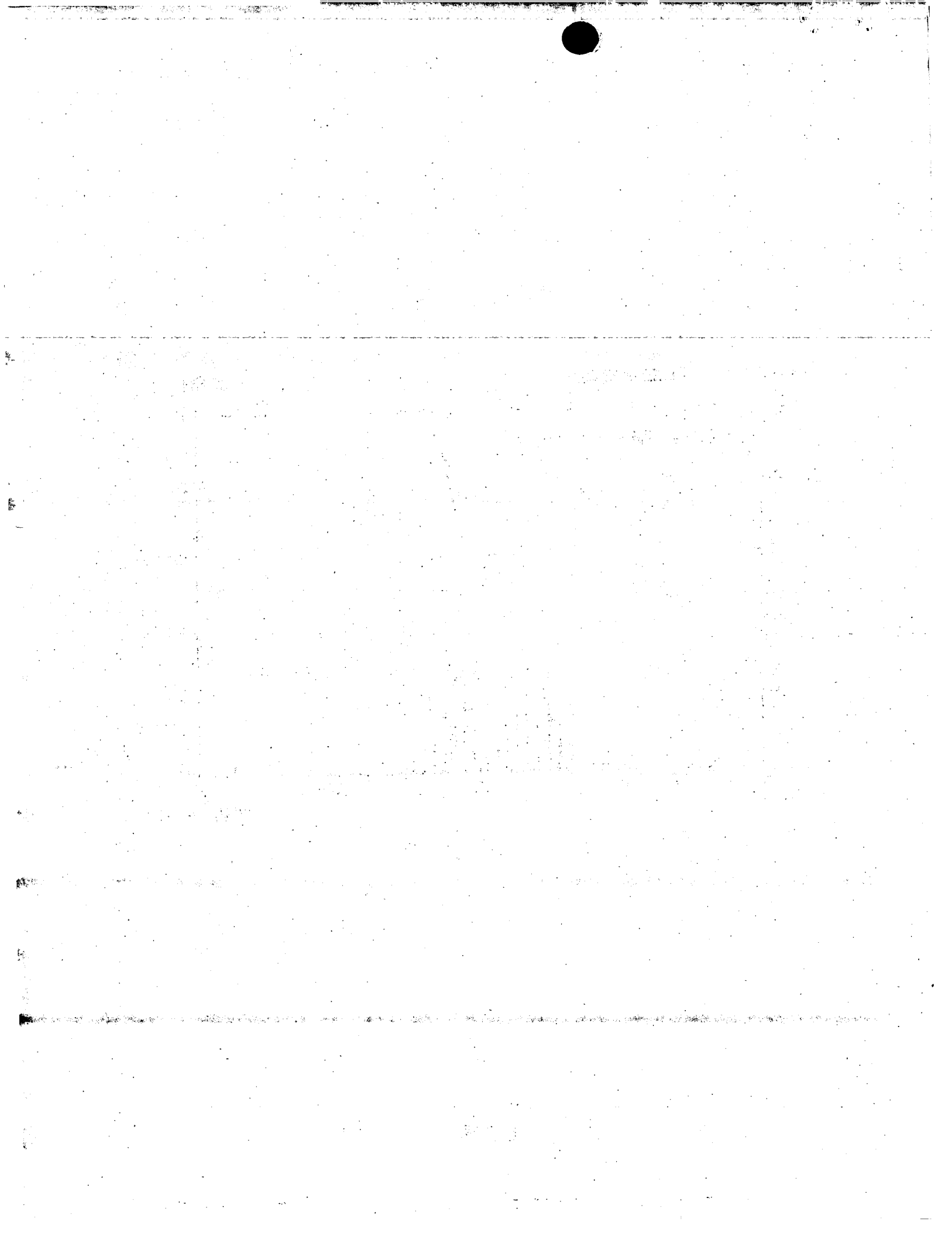
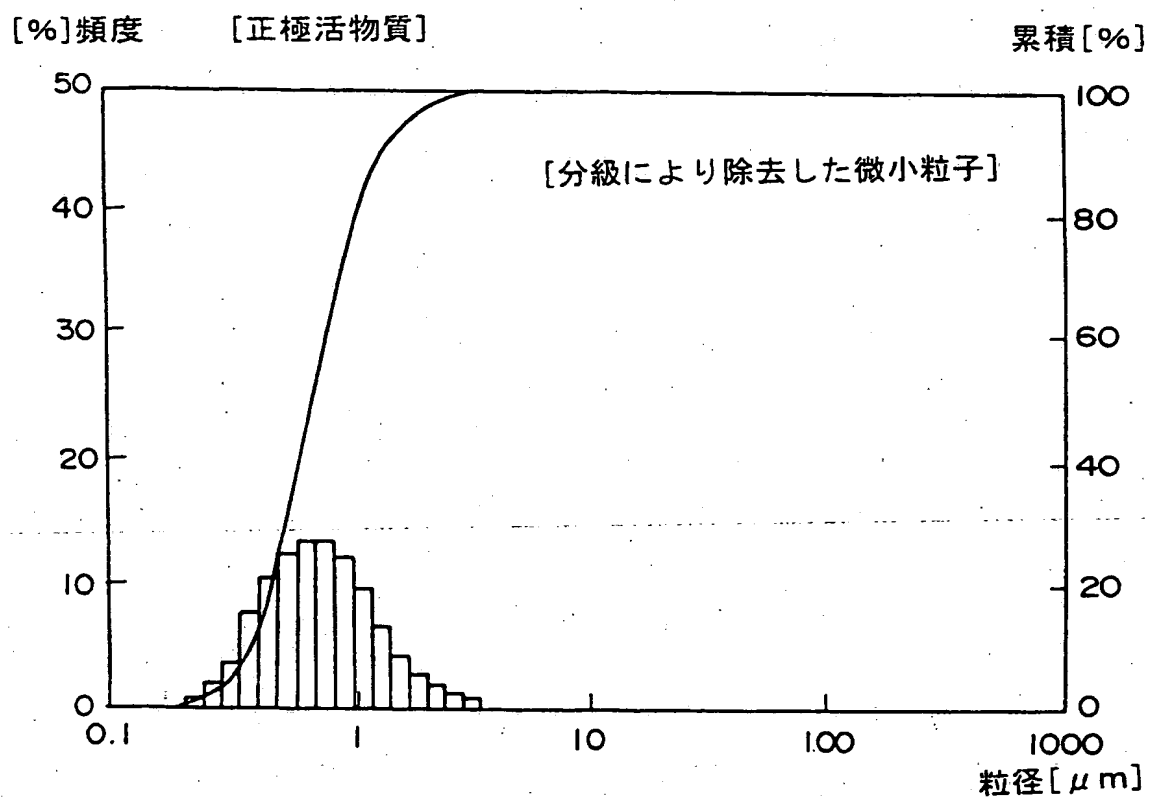


FIG. 6



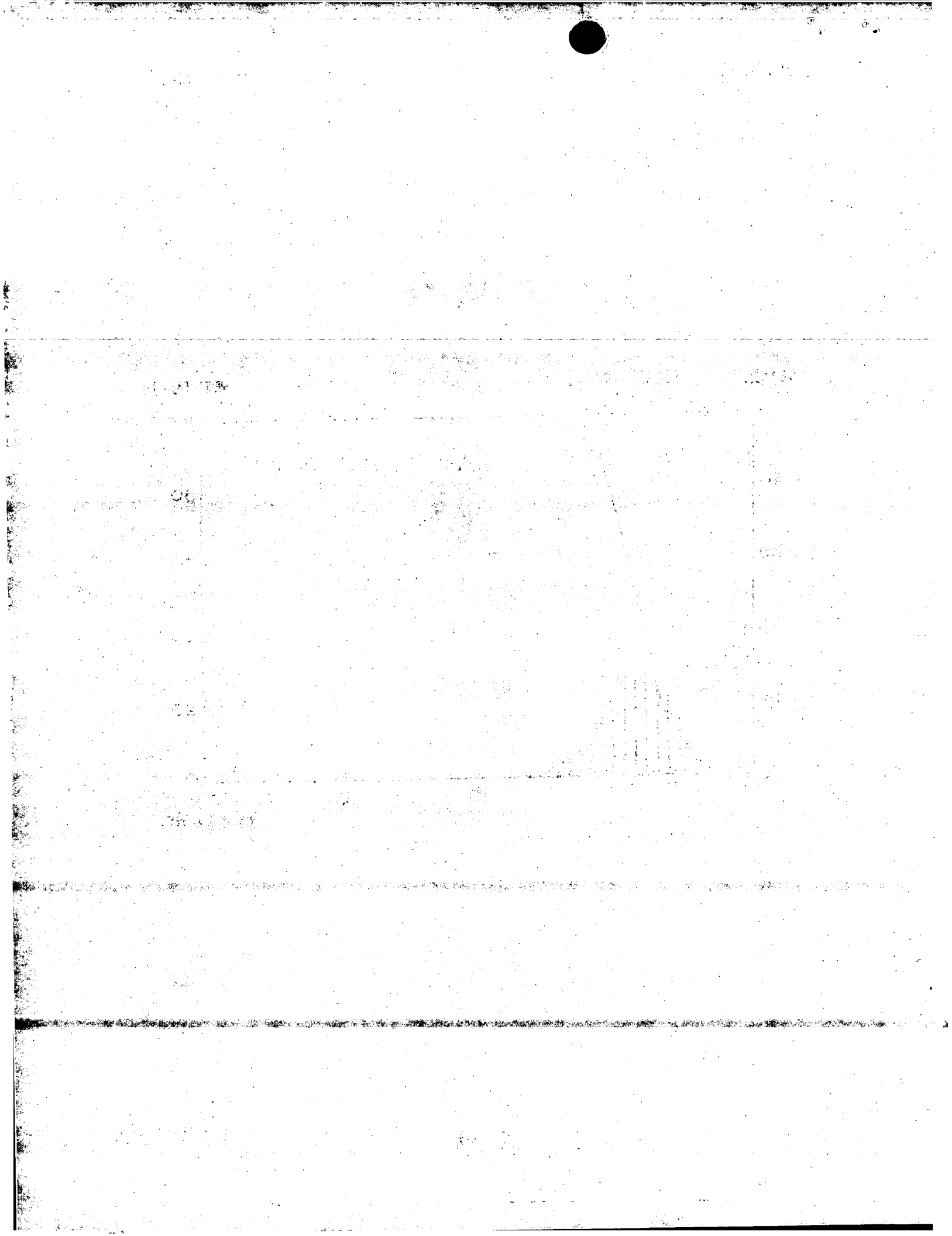




FIG. 7

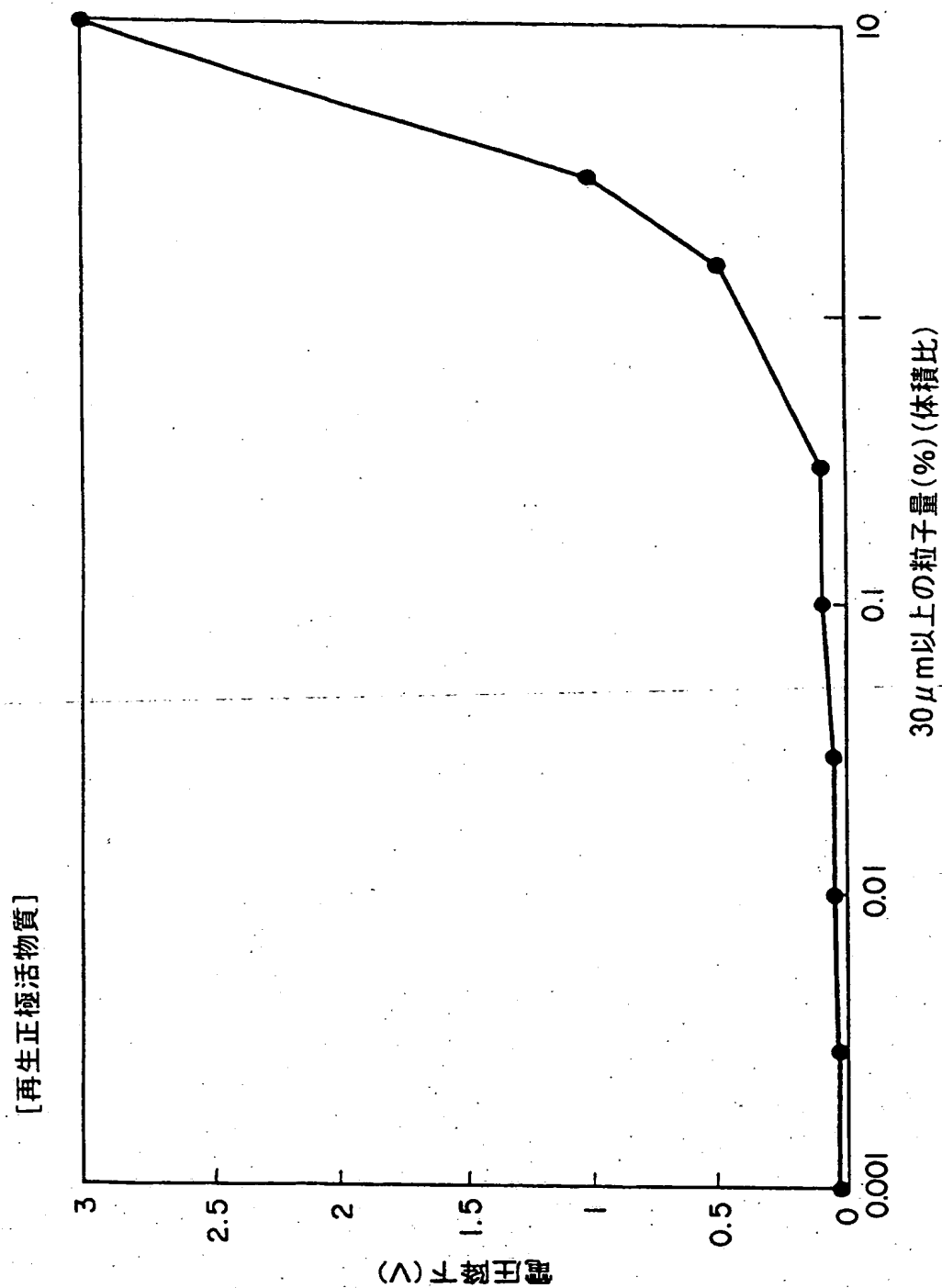




FIG. 8

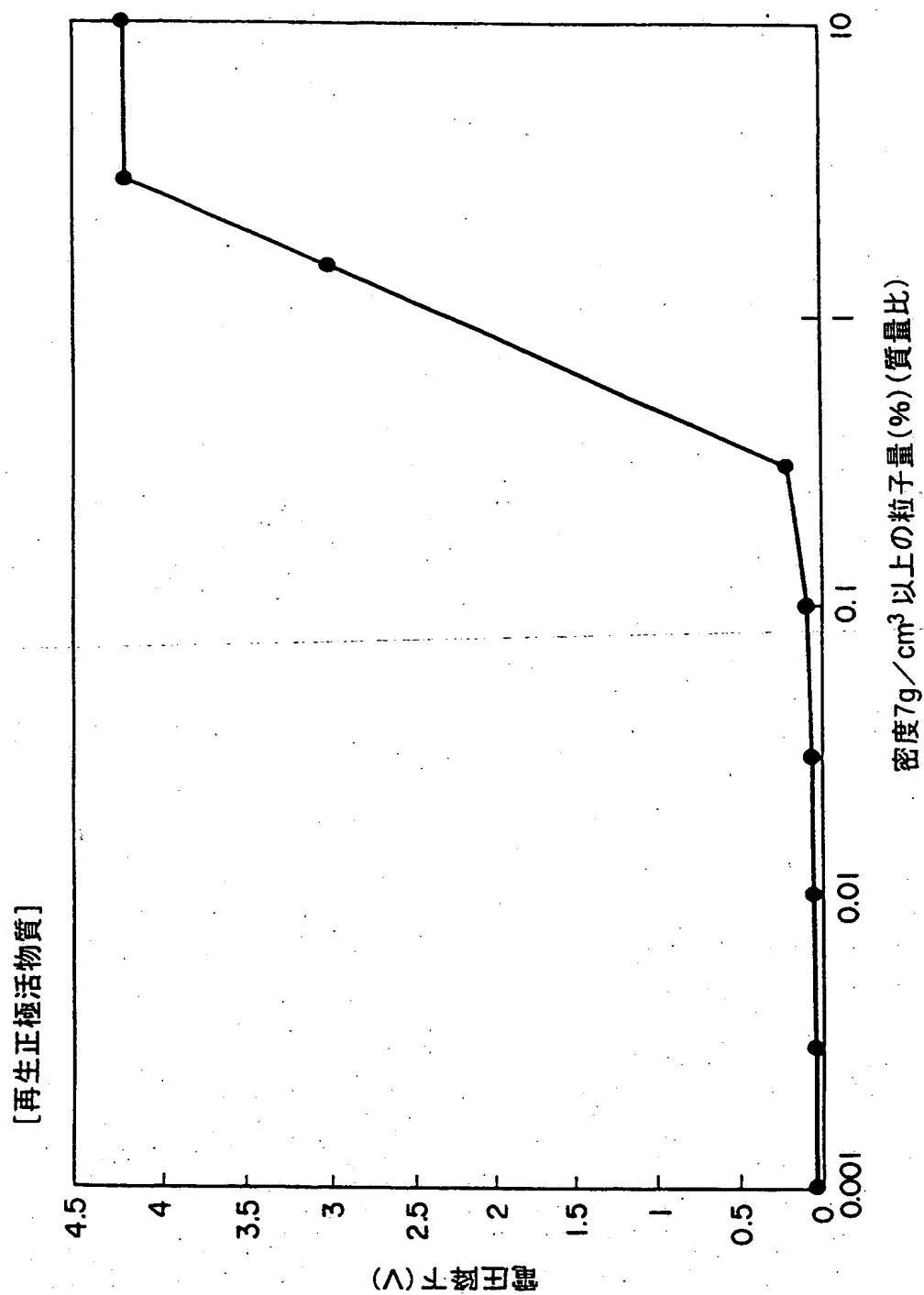




FIG. 9

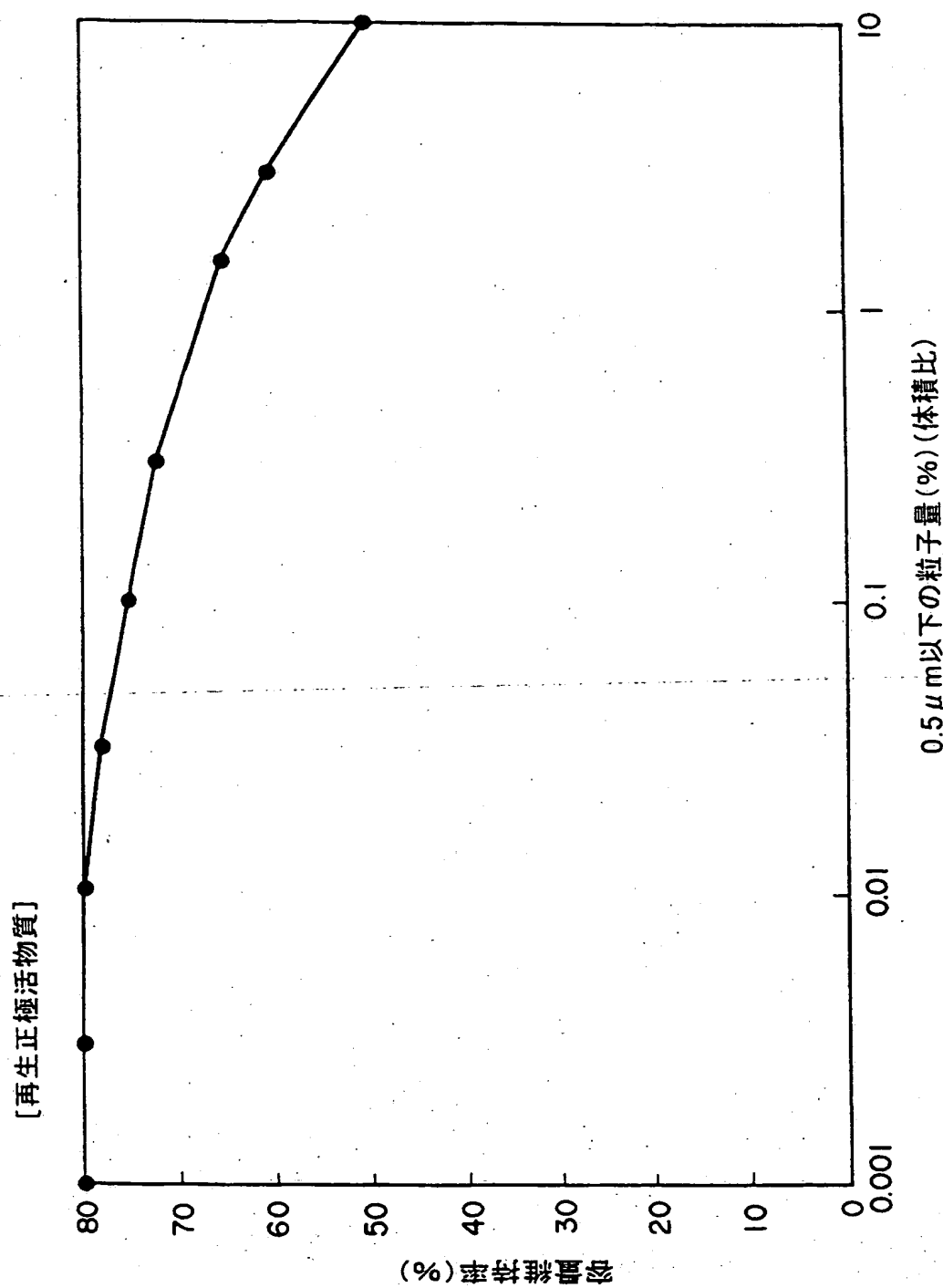
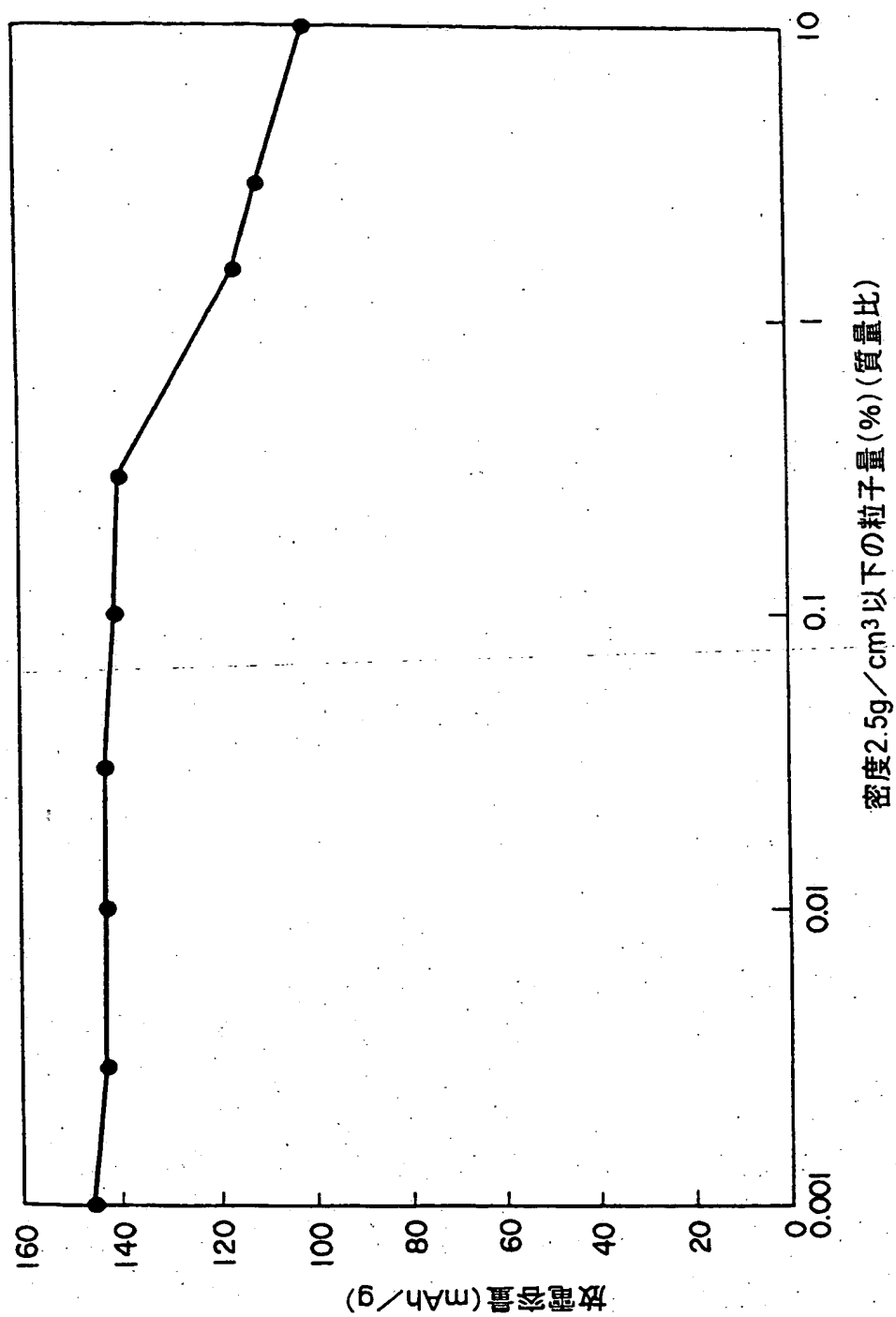




FIG. 10



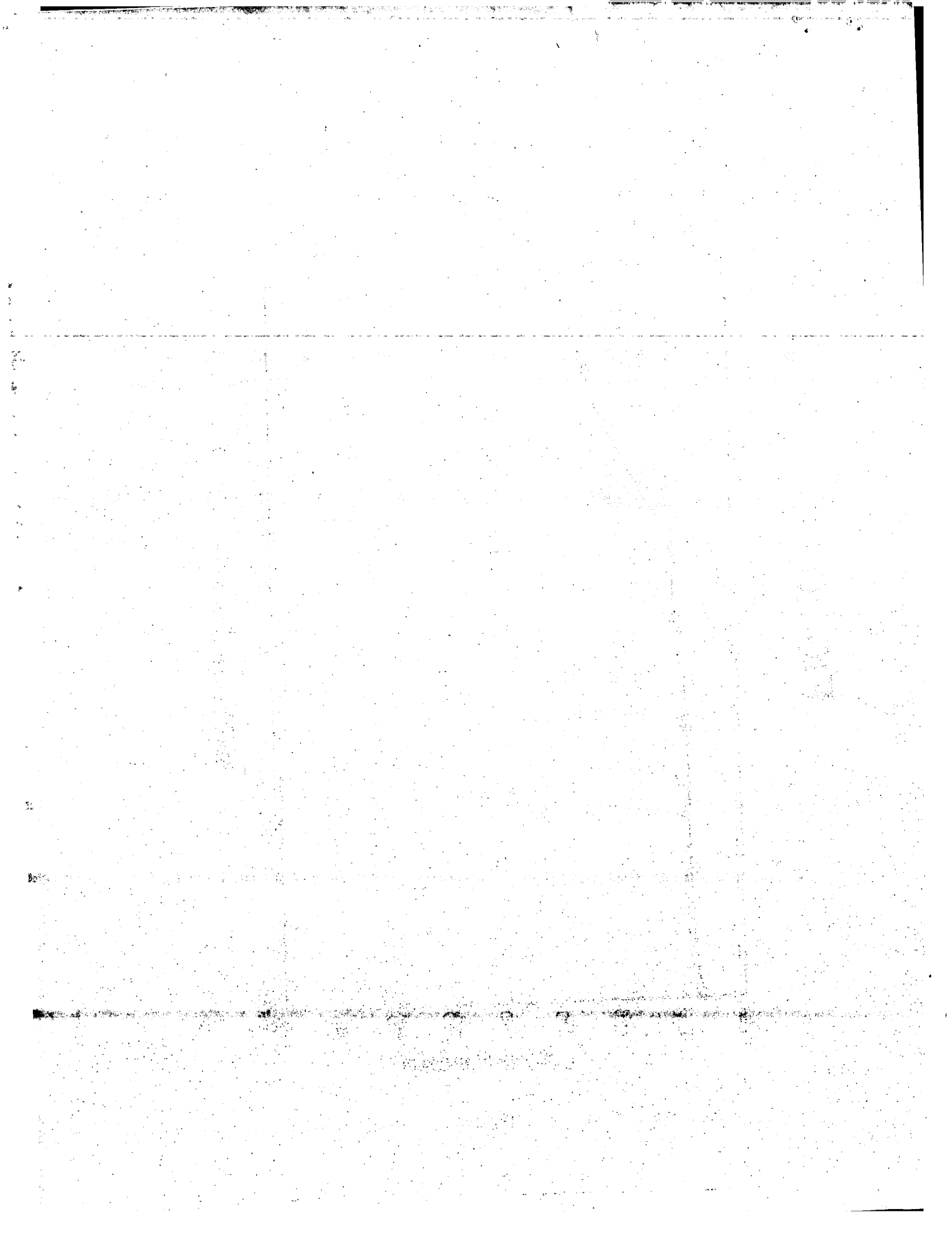




FIG. 11

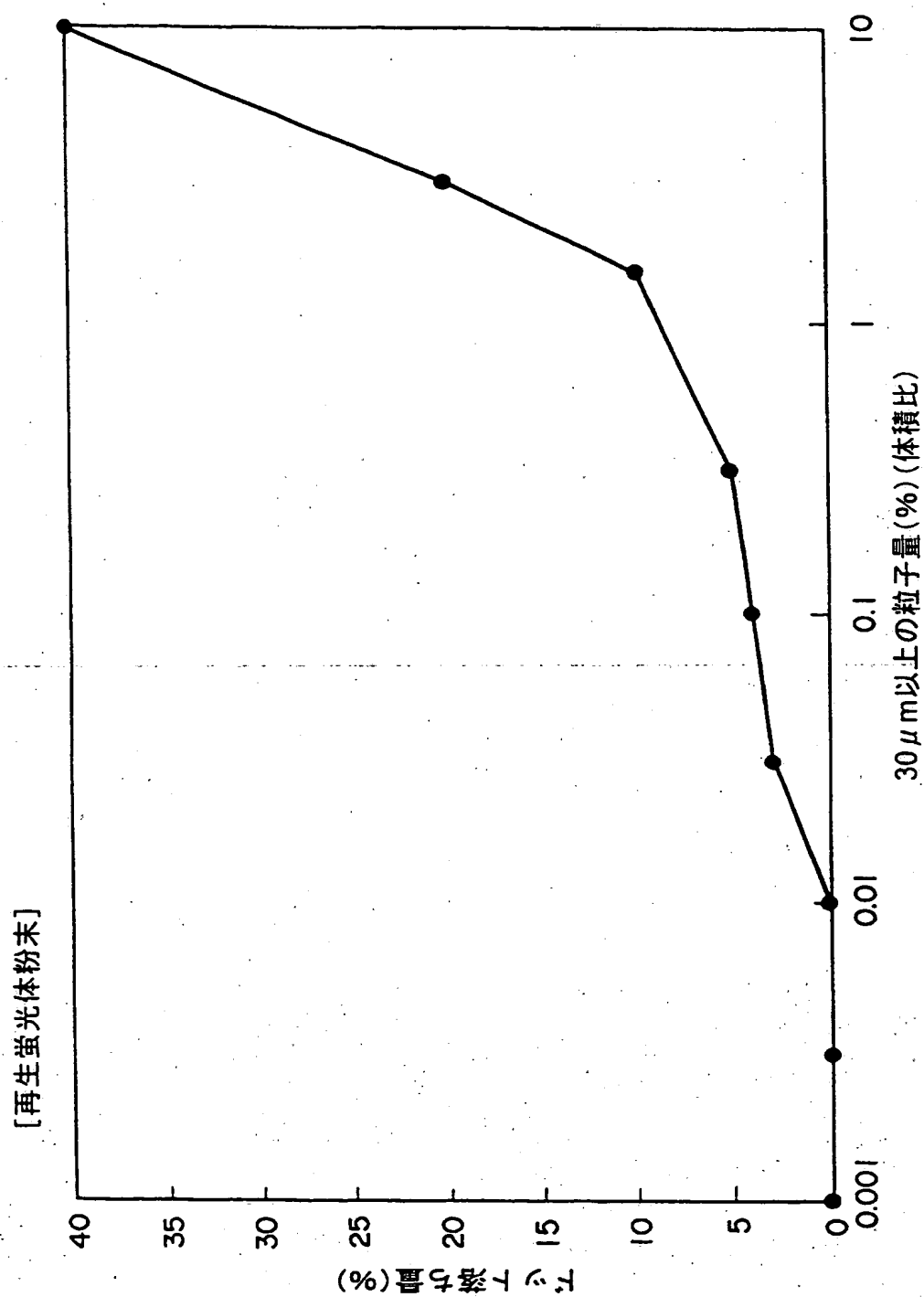
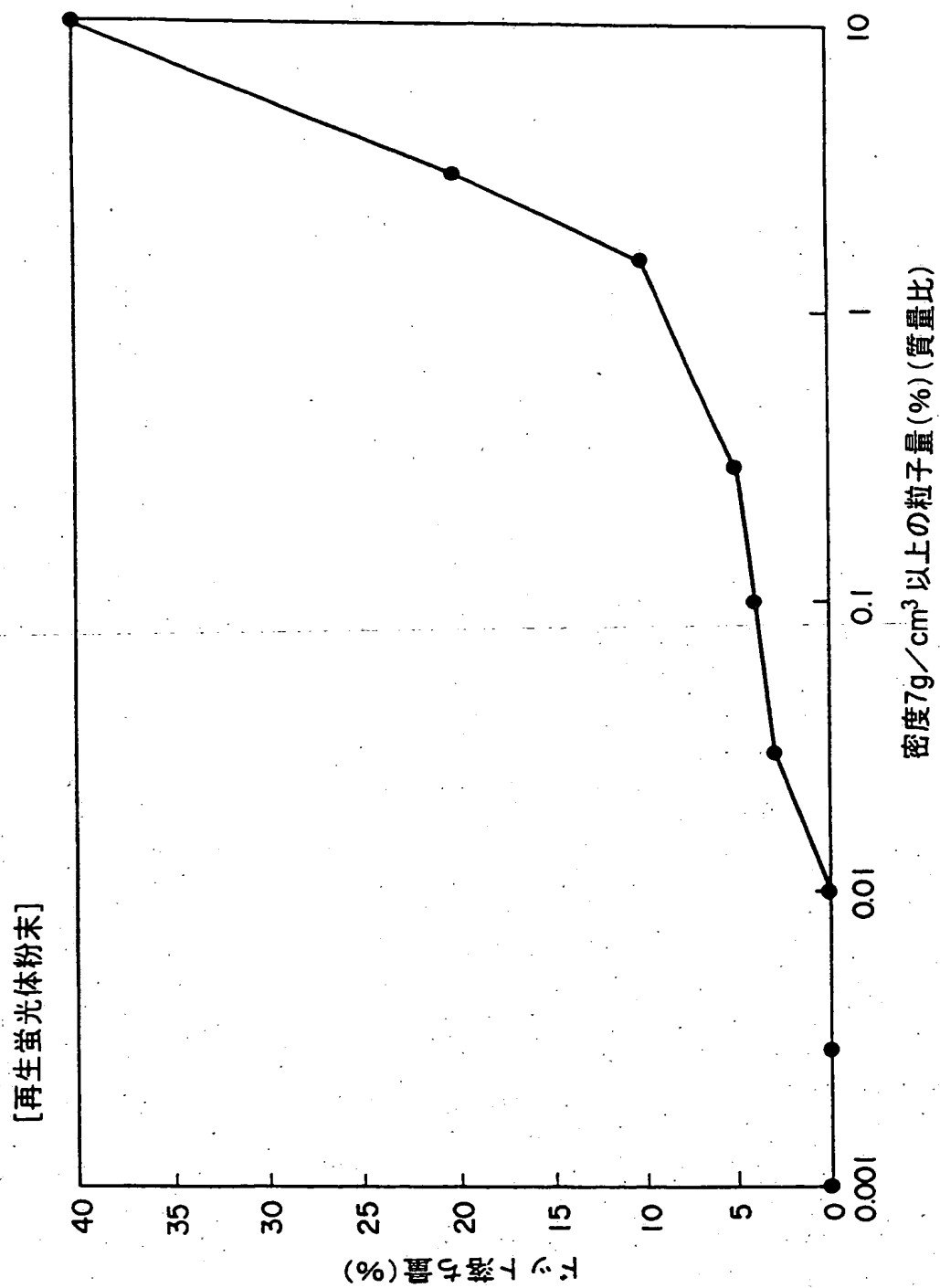




FIG. 12



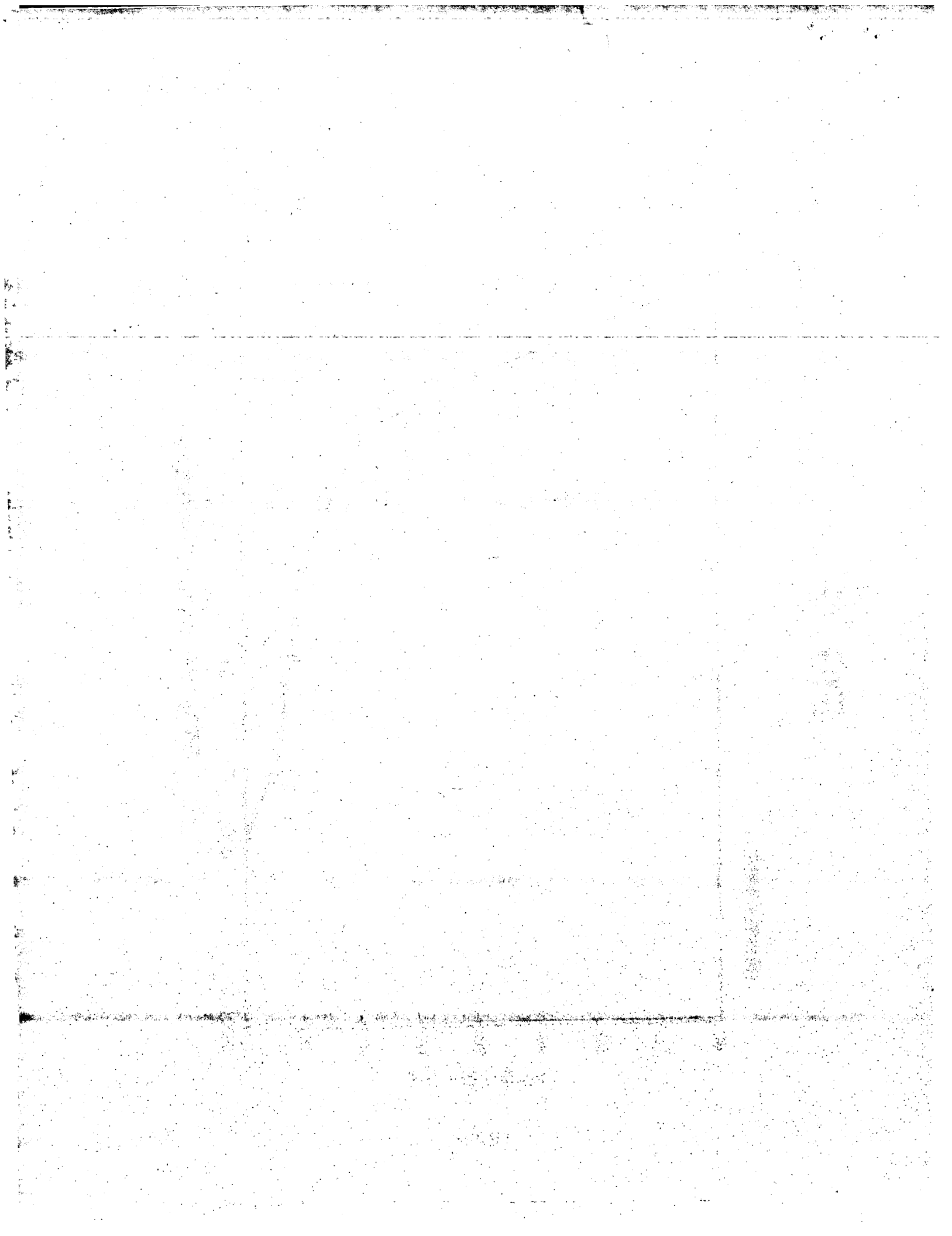
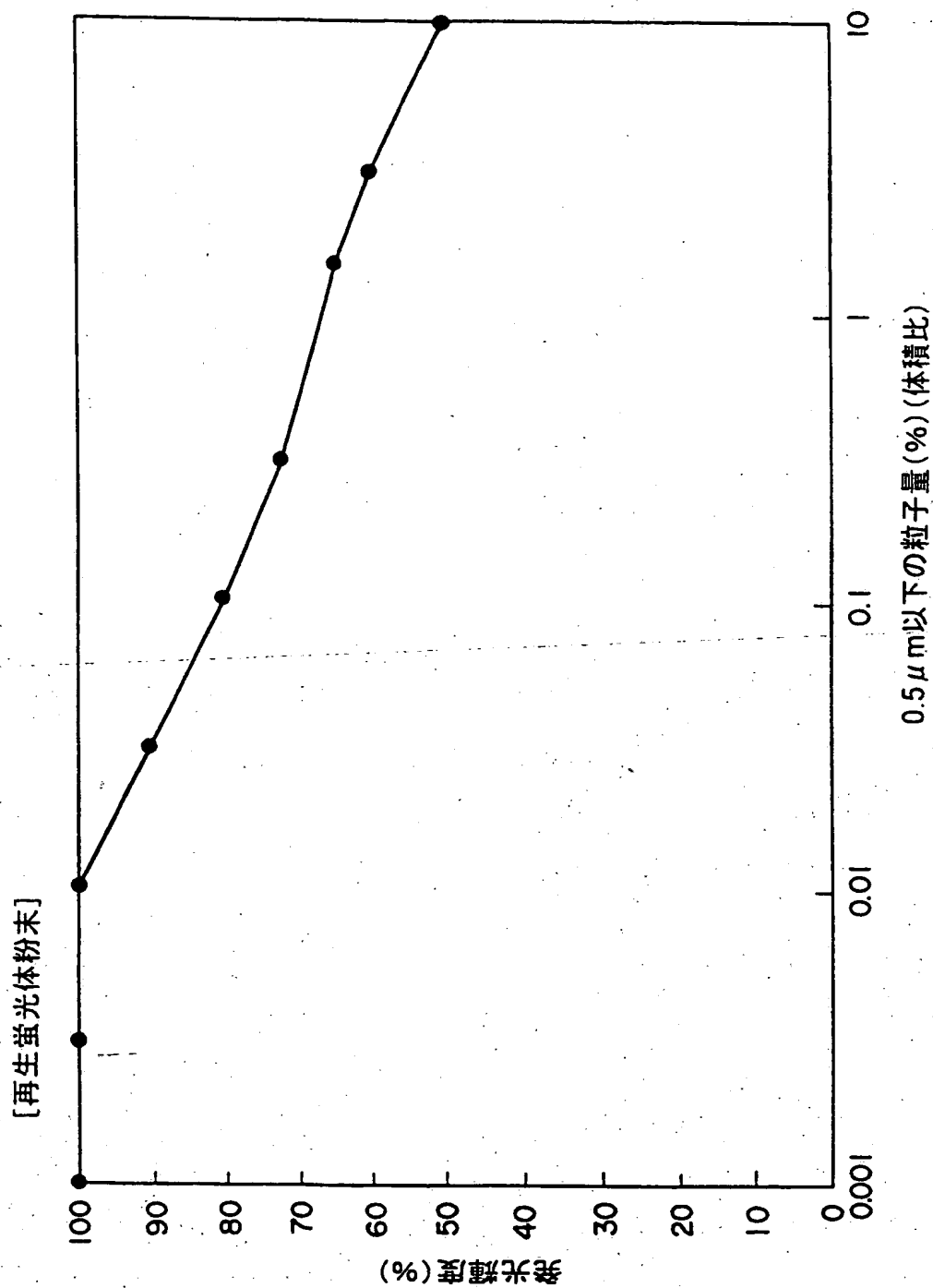


FIG. 13



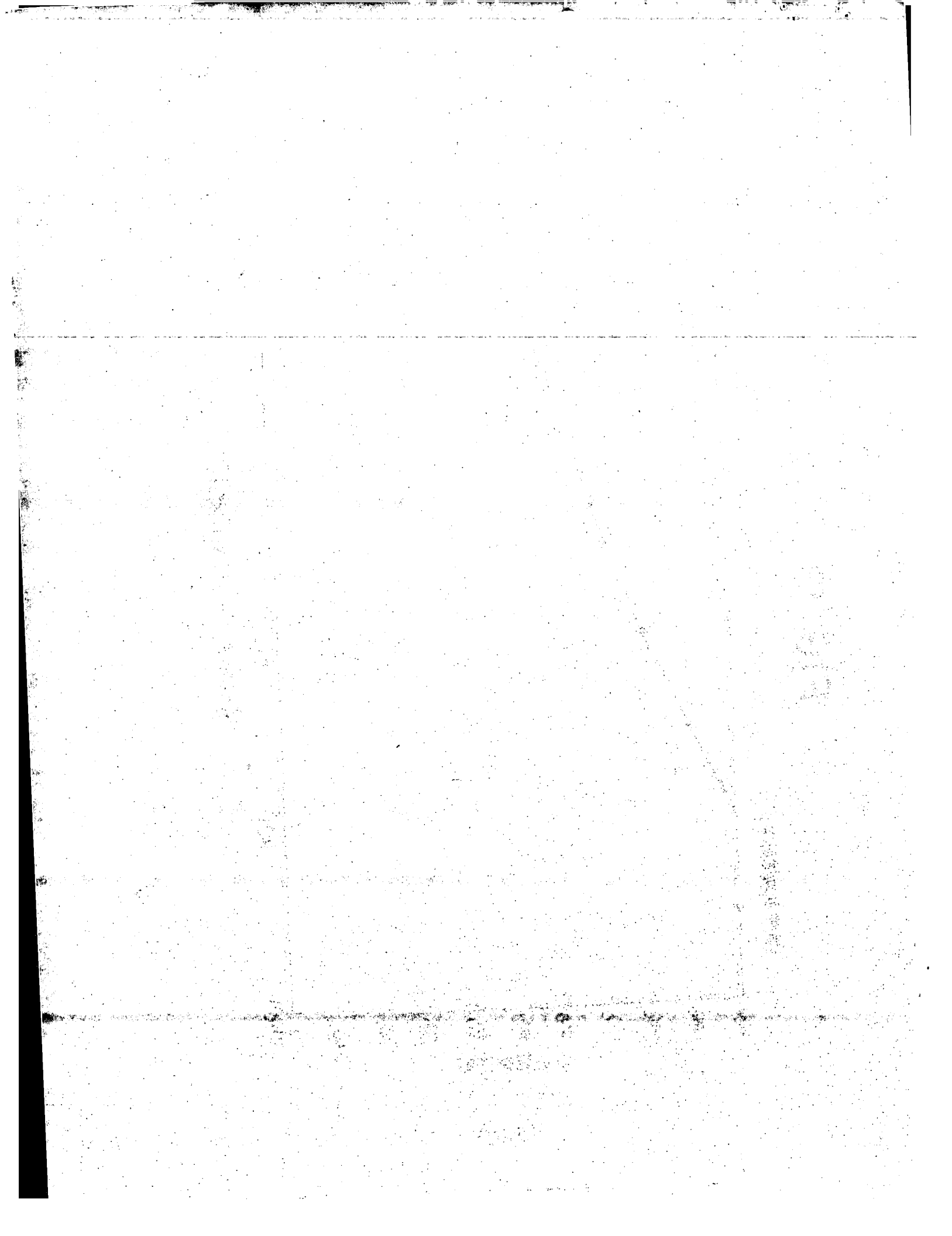
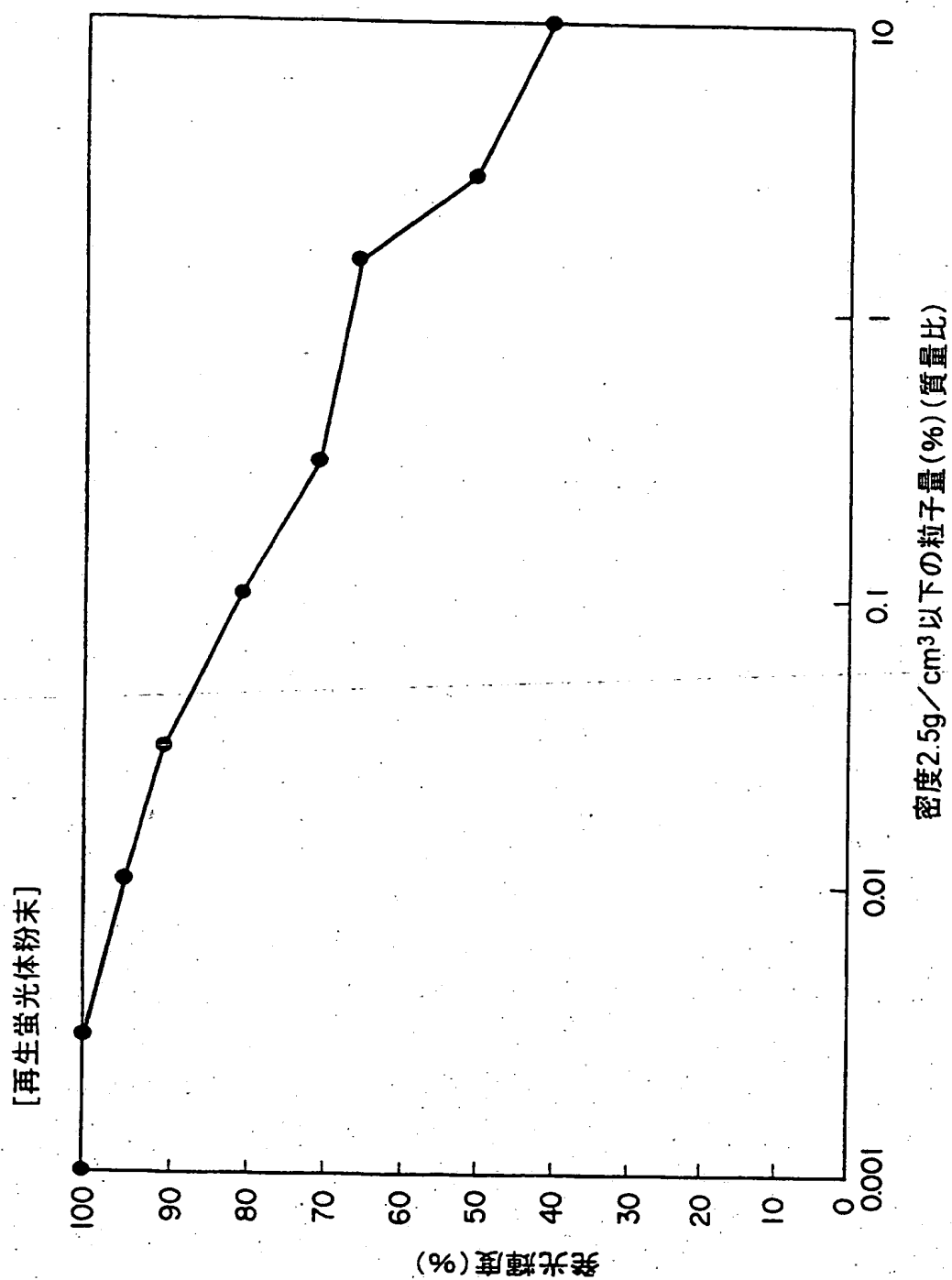
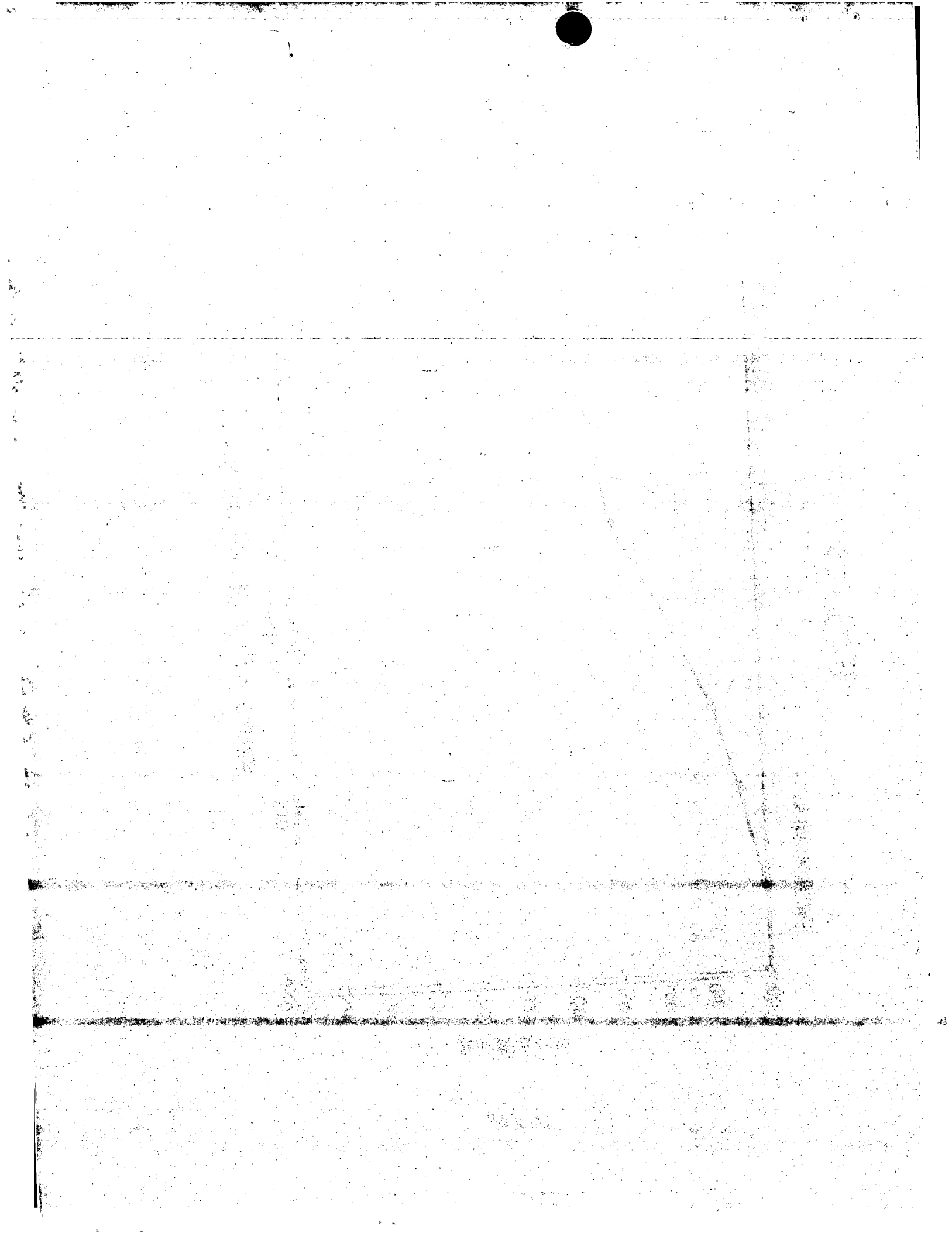


FIG. 14







## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/04007

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
Int.Cl<sup>7</sup> H01M4/58, 10/40, 10/54

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
Int.Cl<sup>7</sup> H01M4/36-4/62, 10/36-10/40, 10/54

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched  
Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2000  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)  
JICST

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP, 11-149925, A (Fuji Film Celtic K.K.), 02 June, 1999 (02.06.99), Claims 1 to 8 (Family: none)	1-15 16-29
X Y	JP, 11-135119, A (Matsushita Electric Ind. Co., Ltd.), 21 May, 1999 (21.05.99), Claims 1 to 3, 6 (Family: none)	1-15 16-29
Y	JP, 8-22846, A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 23 January, 1996 (23.01.96), Claim 1 (Family: none)	16-29
Y	JP, 50-72884, A (Hitachi, Ltd.), 16 June, 1975 (16.06.75), Claims (Family: none)	19, 26

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:  
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  
"E" earlier document but published on or after the international filing date  
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone  
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art  
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
12 September, 2000 (12.09.00)

Date of mailing of the international search report  
19 September, 2000 (19.09.00)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.



A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))  
Int. Cl<sup>7</sup> H01M4/58, 10/40, 10/54

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))  
Int. Cl<sup>7</sup> H01M4/36-4/62, 10/36-10/40, 10/54

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年  
日本国公開実用新案公報 1971-2000年  
日本国実用新案登録公報 1996-2000年  
日本国登録実用新案公報 1994-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)  
JICST

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	JP, 11-149925, A (富士フイルムセルテック株式会社), 2. 6月. 1999 (02. 06. 99), 請求項 1-8 (ファミリーなし)	1-15 16-29
X Y	JP, 11-135119, A (松下電器産業株式会社), 21. 5月. 1999 (21. 05. 99), 請求項 1-3, 6 (ファミリーなし)	1-15 16-29
Y	JP, 8-22846, A (富士写真フイルム株式会社), 23. 1月. 1996 (23. 01. 96) , 請求項 1 (ファミリーなし)	16-29

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

\* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に関する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 12. 09. 00

国際調査報告の発送日

19.09.00

国際調査機関の名称及びあて先  
日本国特許庁 (ISA/J P)  
郵便番号 100-8915  
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)  
高木 正博

4 X 9541

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

国際出願番号 PCT/JP00/04007

国際出願番号 PCT/JP00/04007

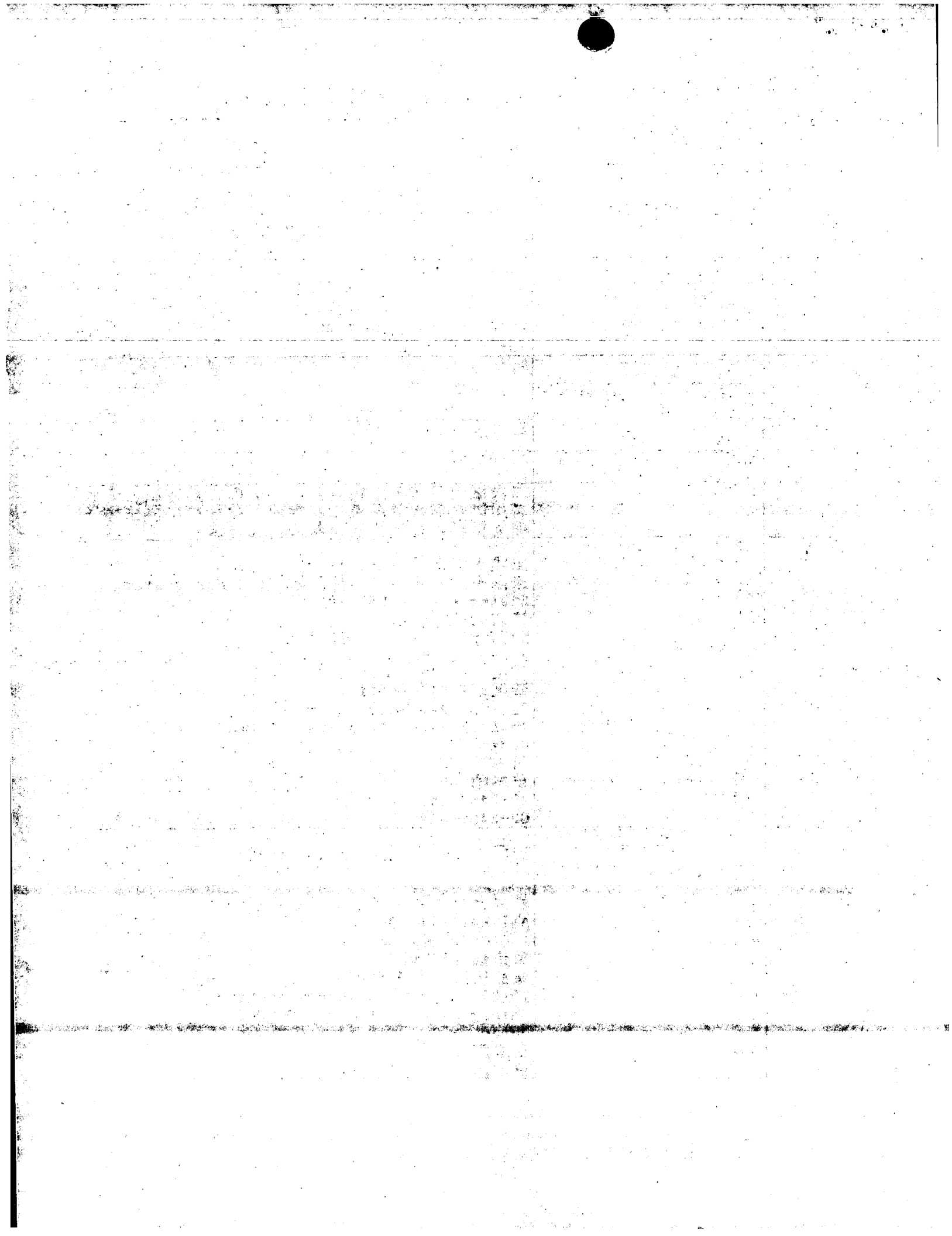
C (続き) . 引用文献の カテゴリー*	関連すると認められる文献 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP, 50-72884, A(株式会社日立製作所), 16. 6月. 1975(16. 06. 75), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	19, 26

## 特許協力条約に基づく国際出願願書

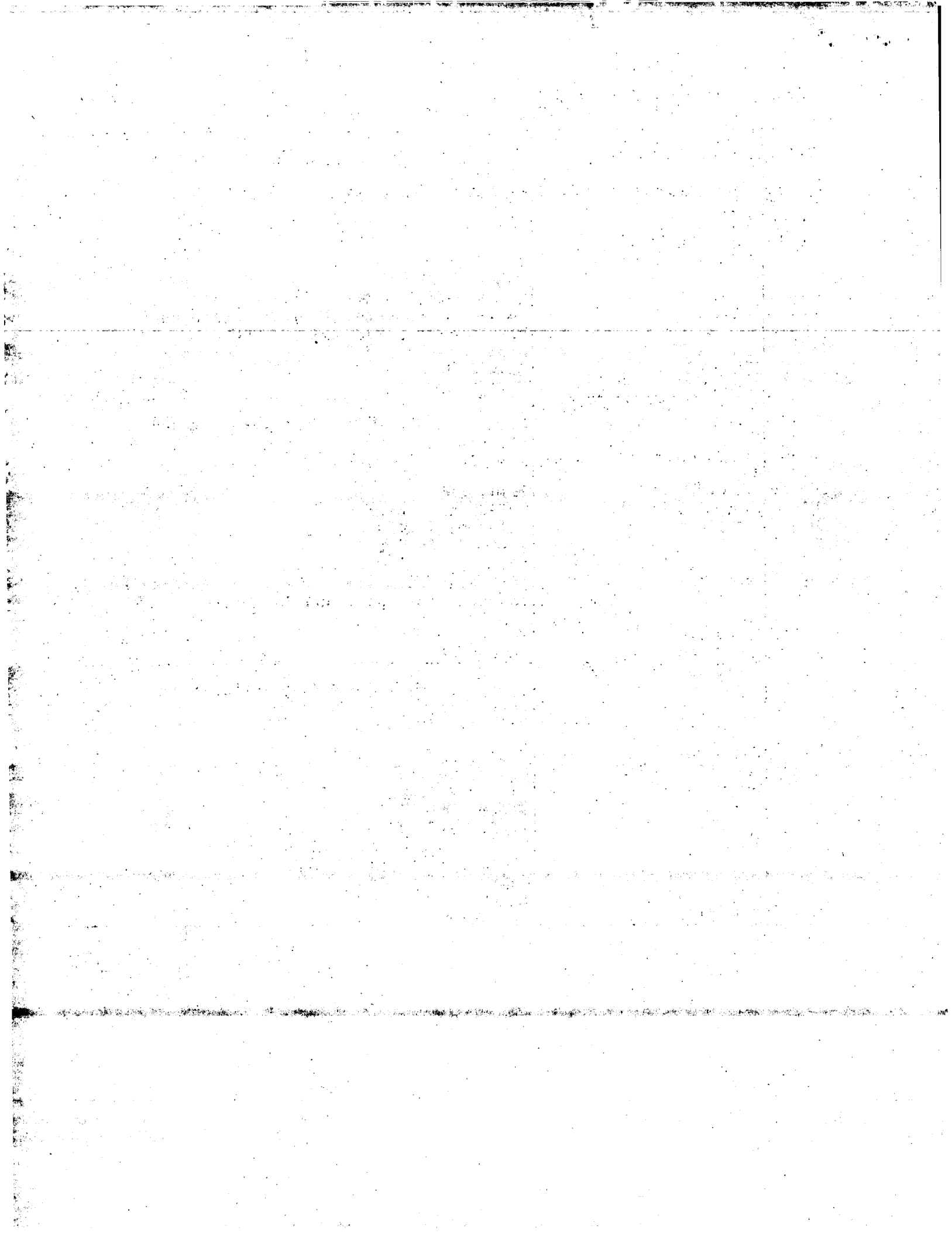
原本(出願用) - 印刷日時 2000年06月16日 (16. 06. 2000) 金曜日 12時00分30秒

FTY0008-PCT

0	受理官庁記入欄	
0-1	国際出願番号	
0-2	国際出願日	
0-3	(受付印)	
0-4	様式-PCT/RO/101 この特許協力条約に基づく 国際出願願書は、 右記によって作成された。	PCT-EASY Version 2.90 (updated 10.05.2000)
0-5	申立て 出願人は、この国際出願が特許 協力条約に従って処理されるこ とを請求する。	
0-6	出願人によって指定された 受理官庁	日本国特許庁 (RO/JP)
0-7	出願人又は代理人の書類記 号	FTY0008-PCT
I	発明の名称	二次電池用正極活物質およびその製造方法とそれ を用いた非水電解液二次電池、ならびに再生電子 機能材料と電子機能材料の再生方法
II	出願人	出願人である (applicant only)
II-1	この欄に記載した者は	米国を除くすべての指定国 (all designated States except US)
II-2	右の指定国についての出願人で ある。	株式会社 東芝 KABUSHIKI KAISHA TOSHIBA 212-0013 日本国 神奈川県 川崎市 幸区堀川町72番地 72, Horikawa-cho, Saiwai-ku, Kawasaki-shi, Kanagawa 212-0013 Japan
II-4ja	名称	
II-4en	Name	
II-5ja	あて名:	
II-5en	Address:	
II-6	国籍 (国名)	日本国 JP
II-7	住所 (国名)	日本国 JP
II-8	電話番号	03-3457-2512
II-9	ファクシミリ番号	03-3456-3229
III-1	その他の出願人又は発明者	出願人である (applicant only)
III-1-1	この欄に記載した者は	JP KR
III-1-2	右の指定国についての出願人で ある。	株式会社エイ・ティーバッテリー A&T BATTERY CORP. 140-0002 日本国 東京都 品川区 東品川四丁目10番27号 10-27, Higashishinagawa 4-chome, Shinagawa-ku, Tokyo 140-0002 Japan
III-1-4ja	名称	
III-1-4en	Name	
III-1-5ja	あて名:	
III-1-5en	Address:	
III-1-6	国籍 (国名)	日本国 JP
III-1-7	住所 (国名)	日本国 JP



III-2 III-2-1	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor)
III-2-2	右の指定国についての出願人である。	米国のみ (US only)
III-2-4ja III-2-4en III-2-5ja	氏名(姓名) Name (LAST, First) あて名:	酒井 亮 SAKAI, Ryo 234-0054 日本国 神奈川県 横浜市 港南区港南台9丁目14-7-203
III-2-5en	Address:	14-7-203, Konandai 9-chome, Konan-ku, Yokohama-shi, Kanagawa 234-0054 Japan
III-2-6	国籍(国名)	日本国 JP
III-2-7	住所(国名)	日本国 JP
III-3 III-3-1	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor)
III-3-2	右の指定国についての出願人である。	米国のみ (US only)
III-3-4ja III-3-4en III-3-5ja	氏名(姓名) Name (LAST, First) あて名:	白川 康博 SHIRAKAWA, Yasuhiro 231-0801 日本国 神奈川県 横浜市 中区新山下3丁目15-3-314
III-3-5en	Address:	15-3-314, Shin-yamashita 3-chome, Naka-ku, Yokohama-shi, Kanagawa 231-0801 Japan
III-3-6	国籍(国名)	日本国 JP
III-3-7	住所(国名)	日本国 JP
III-4 III-4-1	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor)
III-4-2	右の指定国についての出願人である。	米国のみ (US only)
III-4-4ja III-4-4en III-4-5ja	氏名(姓名) Name (LAST, First) あて名:	居安 巨太郎 IYASU, Kotaro 183-0052 日本国 東京都 府中市 新町1丁目77-28
III-4-5en	Address:	77-28, Shin-machi 1-chome, Fuchu-shi, Tokyo 183-0052 Japan
III-4-6	国籍(国名)	日本国 JP
III-4-7	住所(国名)	日本国 JP





III-5 III-5-1	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor)
III-5-2	右の指定国についての出願人である。	米国のみ (US only)
III-5-4ja III-5-4en III-5-5ja	氏名(姓名) Name (LAST, First) あて名:	鈴木 信和 SUZUKI, Nobukazu 143-0014 日本国 東京都 大田区 大森中2丁目8-12
III-5-5en	Address:	8-12, Omorinaka 2-chome, Ota-ku, Tokyo 143-0014 Japan
III-5-6	国籍(国名)	日本国 JP
III-5-7	住所(国名)	日本国 JP
III-6 III-6-1	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor)
III-6-2	右の指定国についての出願人である。	米国のみ (US only)
III-6-4ja III-6-4en III-6-5ja	氏名(姓名) Name (LAST, First) あて名:	三井 久安 MITSUI, Hisayasu 226-0003 日本国 神奈川県 横浜市 緑区鴨居1-15-1-202
III-6-5en	Address:	1-15-1-202, Kamoi, Midori-ku, Yokohama-shi, Kanagawa 226-0003 Japan
III-6-6	国籍(国名)	日本国 JP
III-6-7	住所(国名)	日本国 JP
IV-1	代理人又は共通の代表者、 通知のあて名 下記の者は国際機関において右 記のごとく出願人のために行動 する。	代理人 (agent)
IV-1-1ja IV-1-1en IV-1-2ja	氏名(姓名) Name (LAST, First) あて名:	須山 佐一 SUYAMA, Saichi 101-0046 日本国 東京都 千代田区 神田多町2丁目1番地 神田東山ビル
IV-1-2en	Address:	Kandahigashiyama BLDG. 1, Kandatacho 2-chome, Chiyoda-ku, Tokyo 101-0046 Japan
IV-1-3	電話番号	03-3254-1039
IV-1-4	ファクシミリ番号	03-3252-7309
V	国の指定	
V-1	広域特許 (他の種類の保護又は取扱いを 求める場合には括弧内に記載す る。)	EP: AT BE CH&LI CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LU MC NL PT SE 及びヨーロッパ特許条約と特許協力条約の締約国 である他の国
V-2	国内特許 (他の種類の保護又は取扱いを 求める場合には括弧内に記載す る。)	CA CN JP KR US



## 特許協力条約に基づく国際出願願書

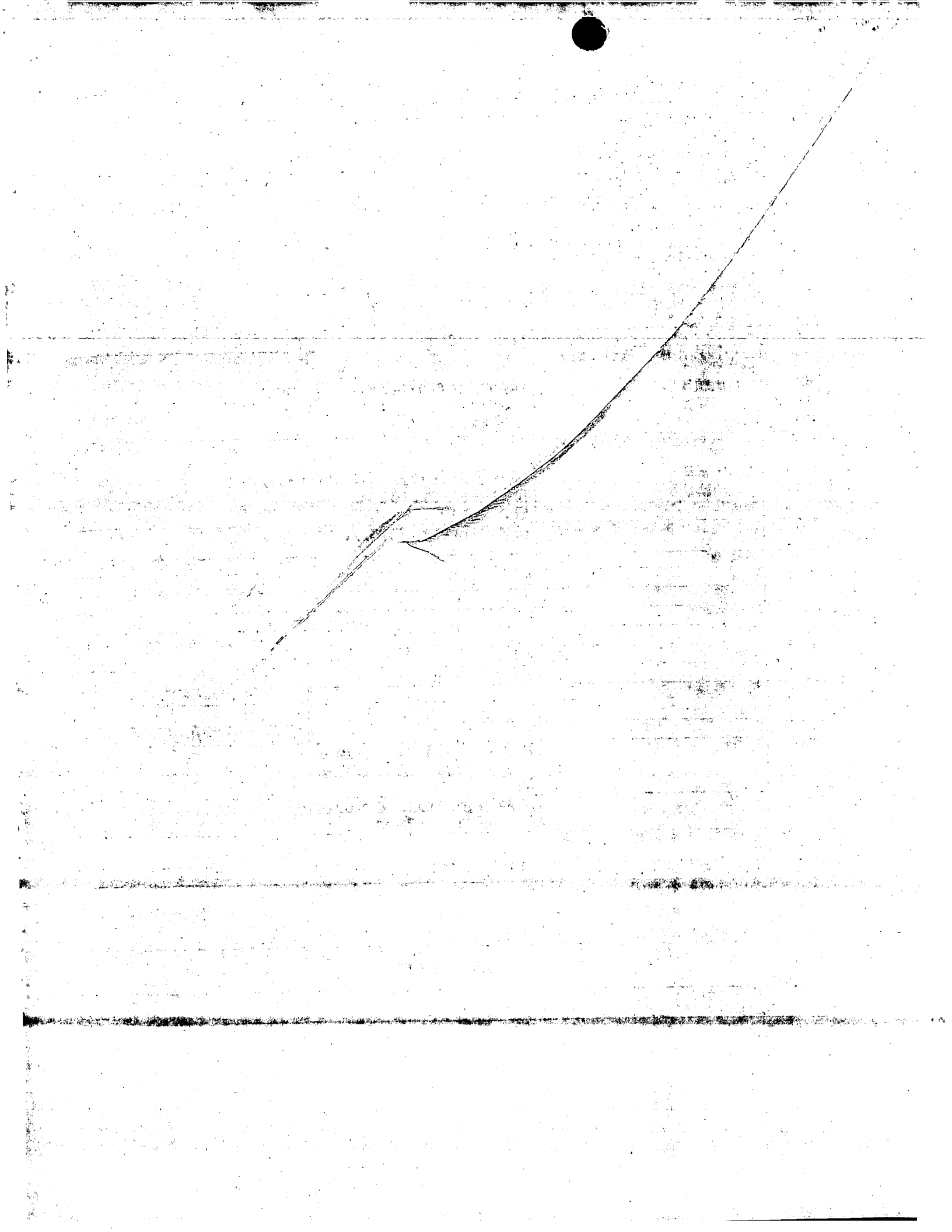
FTY0008-PCT

原本(出願用) - 印刷日時 2000年06月16日 (16. 06. 2000) 金曜日 12時00分30秒

V-5	指定の確認の宣言 出願人は、上記の指定に加えて、規則4:9(b)の規定に基づき、特許協力条約のもとで認められる他の全ての国の指定を行う。ただし、V-6欄に示した国の指定を除く。出願人は、これらの追加される指定が確認を条件としていること、並びに優先日から15月が経過する前にその確認がなされない指定は、この期間の経過時に、出願人によって取り下げられたものとみなされることを宣言する。		
V-6	指定の確認から除かれる国	なし (NONE)	
VI-1	先の国内出願に基づく優先権主張		
VI-1-1	先の出願日	1999年06月21日 (21. 06. 1999)	
VI-1-2	先の出願番号	特願平11-174758	
VI-1-3	国名	日本国 JP	
VI-2	先の国内出願に基づく優先権主張		
VI-2-1	先の出願日	1999年08月13日 (13. 08. 1999)	
VI-2-2	先の出願番号	特願平11-229162	
VI-2-3	国名	日本国 JP	
VII-1	特定された国際調査機関 (ISA)	日本国特許庁 (ISA/JP)	
VIII	照合欄	用紙の枚数	添付された電子データ
VIII-1	願書	5	-
VIII-2	明細書	49	-
VIII-3	請求の範囲	6	-
VIII-4	要約	1	ftty0008pctabstract.txt
VIII-5	図面	14	-
VIII-7	合計	75	
VIII-8	添付書類	添付	添付された電子データ
VIII-8	手数料計算用紙	✓	-
VIII-16	PCT-EASYディスク	-	フレキシブルディスク
VIII-17	その他	納付する手数料に相当する特許印紙を貼付した書面	-
VIII-17	その他	国際事務局の口座への振込を証明する書面	-
VIII-18	要約書とともに提示する図の番号	4	
VIII-19	国際出願の使用言語名:	日本語 (Japanese)	
IX-1	提出者の記名押印		
IX-1-1	氏名(姓名)	須山 佐一	

受理官庁記入欄

10-1	国際出願として提出された書類の実際の受理の日	
------	------------------------	--



## 特許協力条約に基づく国際出願願書

FTY0008-PCT

原本（出願用） - 印刷日時 2000年06月16日（16.06.2000）金曜日 12時00分30秒

10-2	図面：	
10-2-1	受理された	
10-2-2	不足図面がある	
10-3	国際出願として提出された書類を補完する書類又は図面であつてその後期間内に提出されたものの実際の受理の日（訂正日）	
10-4	特許協力条約第11条(2)に基づく必要な補完の期間内の受理の日	
10-5	出願人により特定された国際調査機関	ISA/JP
10-6	調査手数料未払いにつき、国際調査機関に調査用写しを送付していない	

## 国際事務局記入欄

11-1	記録原本の受理の日	
------	-----------	--



## PCT手数料計算用紙(願書付属書)

FTY0008-PCT

原本(出願用) - 印刷日時 2000年06月16日 (16. 06. 2000) 金曜日 12時00分30秒

[この用紙は、国際出願の一部を構成せず、国際出願の用紙の枚数に算入しない]

0	受理官庁記入欄			
0-1	国際出願番号			
0-2	受理官庁の日付印			
0-4	様式-PCT/R0/101 (付属書)			
0-4-1	このPCT手数料計算用紙は、 右記によって作成された。	PCT-EASY Version 2.90 (updated 10. 05. 2000)		
0-9	出願人又は代理人の書類記号	FTY0008-PCT		
2	出願人	株式会社 東芝		
12	所定の手数料の計算	金額/係数	小計 (JPY)	
12-1	送付手数料 T	⇒	18,000	
12-2	調査手数料 S	⇒	72,000	
12-3	国際手数料 基本手数料 (最初の30枚まで) b1	46,000		
12-4	30枚を超える用紙の枚数	45		
12-5	用紙1枚の手数料 (X)	1,100		
12-6	合計の手数料 b2	49,500		
12-7	b1 + b2 = B	95,500		
12-8	指定手数料 国際出願に含まれる指定国 数	6		
12-9	Number of designation fees payable (maximum 8)	6		
12-10	1指定当たりの手数料 (X)	9,900		
12-11	合計の指定手数料 D	59,400		
12-12	PCT-EASYによる料金の 減額 R	-14,200		
12-13	国際手数料の合計 (B+D-R) I	⇒	140,700	
12-17	納付すべき手数料の合計 (T+S+I+P)	⇒	230,700	
12-19	支払方法	送付手数料: 特許印紙 調査手数料: 特許印紙 国際手数料: 銀行口座への振込み 優先権証明書請求手数料: 特許印紙		

EASYによるチェック結果と出願人による言及

13-1-1	出願人による言及 氏名(名称)	7784 弁理士 須山 佐一
13-2-1	EASYによるチェック結果 願書	Green? 発明の名称はできるだけ短く的確にまとめてくだ さい。





13-2-2	EASYによるチェック結果 指定国	Green? より多くの指定が可能です。(以下の国が指定からはずされています: AP: ( GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW); EA: ( AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM); OA: ( BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG); AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CH, LI, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, UZ, VN, YU, ZA, ZW) 確認してください。
13-2-6	EASYによるチェック結果 内訳	Yellow! すべての出願人が願書に署名(記名押印)をしない限り、委任状又は包括委任状の写しを添付する必要があります。
		Green? 優先権の主張 1: 優先権証明書が添付されていません。(優先権主張日から16ヶ月以内に提出しなければなりません。)
		Green? 優先権の主張 2: 優先権証明書が添付されていません。(優先権主張日から16ヶ月以内に提出しなければなりません。)
13-2-9	EASYによるチェック結果 注釈	Yellow! 願書に表示しなければならない通常の項目はすべて他のPCT-EASYの機能で入力することができます。言及を用いた表示の有効性について確認してください。
13-2-10	EASYによるチェック結果 受理官庁/国際事務局記入欄	Green? この願書を作成したPCT-EASYは英語版ないし西欧言語版以外のWindows上で動作しています。ASCII文字以外の文字について、願書と電子データを注意して比較してください。



## ご利用明細

本日はご来店いただきありがとうございます。

年月日	時刻	取扱店番	銀行番号支店番号	口座番号	印紙税申告納付につき随時税務署承認済
120616	13.43	01010101			
お取引内容	お取引金額	お取引していない場合	残高	お取扱金種	
お振込	¥140,700		おつり	¥5,000	
ご案内	<p>お受取人 東京三菱銀行 内幸町支店 普通 0473286 WIPO-PCT GENEVA 様 ご依頼人 リクラクコクワイツキヨシムシヨ スヤマワイチ 様 03-3254-1039 税込手数料 315円を いただきました</p>				


普通預金よりも金利がおトクで  
出し入れ自由、便利な預金です。

東京三菱のスーパー貯蓄 **アイン**

詳しくは  
裏面へ

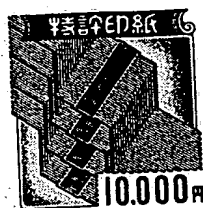
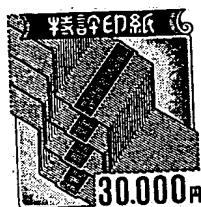
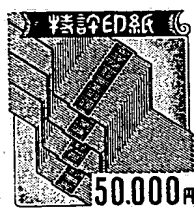
●残高欄の金額は決済未確定の証券類をきんでいます。

●残高の頭に「-」がある場合は、お借入れ残高を表わします。

 東京三菱銀行

基本手数料	95,500円
指定手数料	59,400円
減 額	-14,200円
合計 (国際手数料)	140,700円





送付手数料・調査手数料 90,000円



審査請求は登録国際予備審査機関へ直接しなければならぬ  
E A / J P

第 II 章

特許協力条約に基づく国際出願  
国際予備審査請求書

出願人は、次の国際出願が特許協力条約に従って国際予備審査の対象とされることを請求し、  
選定資格のある全ての国を選定する。ただし、特段の表示がある場合を除く。

国際予備審査機関記入欄	
国際予備審査機関の確認	請求書の受理の日
第 I 欄 国際出願の表示	出願人又は代理人の書類記号 FTY0008-PCT
国際出願番号 PCT/JP00/04007	国際出願日 (日. 月. 年) 20. 06. 00
	優先日 (最先のもの) (日. 月. 年) 21. 06. 99

発明の名称  
二次電池用正極活物質およびその製造方法とそれを用いた非水電解液二次電池、  
ならびに再生電子機能材料と電子機能材料の再生方法

第 II 欄 出願人	電話番号:
氏名 (名称) 及びあて名: (姓・名の順に記載; 法人は公式の完全な名称を記載; あて名は郵便番号及び国名も記載) 株式会社 東芝 KABUSHIKI KAISHA TOSHIBA 〒212-0013 日本国神奈川県川崎市幸区堀川町72番地 72, H rikawa-cho, Saiwai-ku, Kawasaki-shi, Kanagawa 212-0013 Japan	03-3457-2512
	ファクシミリ番号: 03-3456-3229
	加入電信番号:

国籍 (国名): 日本国 JAPAN	住所 (国名): 日本国 JAPAN
--------------------	--------------------

氏名 (名称) 及びあて名: (姓・名の順に記載; 法人は公式の完全な名称を記載; あて名は郵便番号及び国名も記載) 株式会社 エイ・ティーバッテリー A&T BATTERY CORP. 〒140-0002 日本国東京都品川区東品川四丁目10番27号 10-27, Higashishinagawa 4-chome, Shinagawa-ku, Tokyo 140-0002 Japan
---

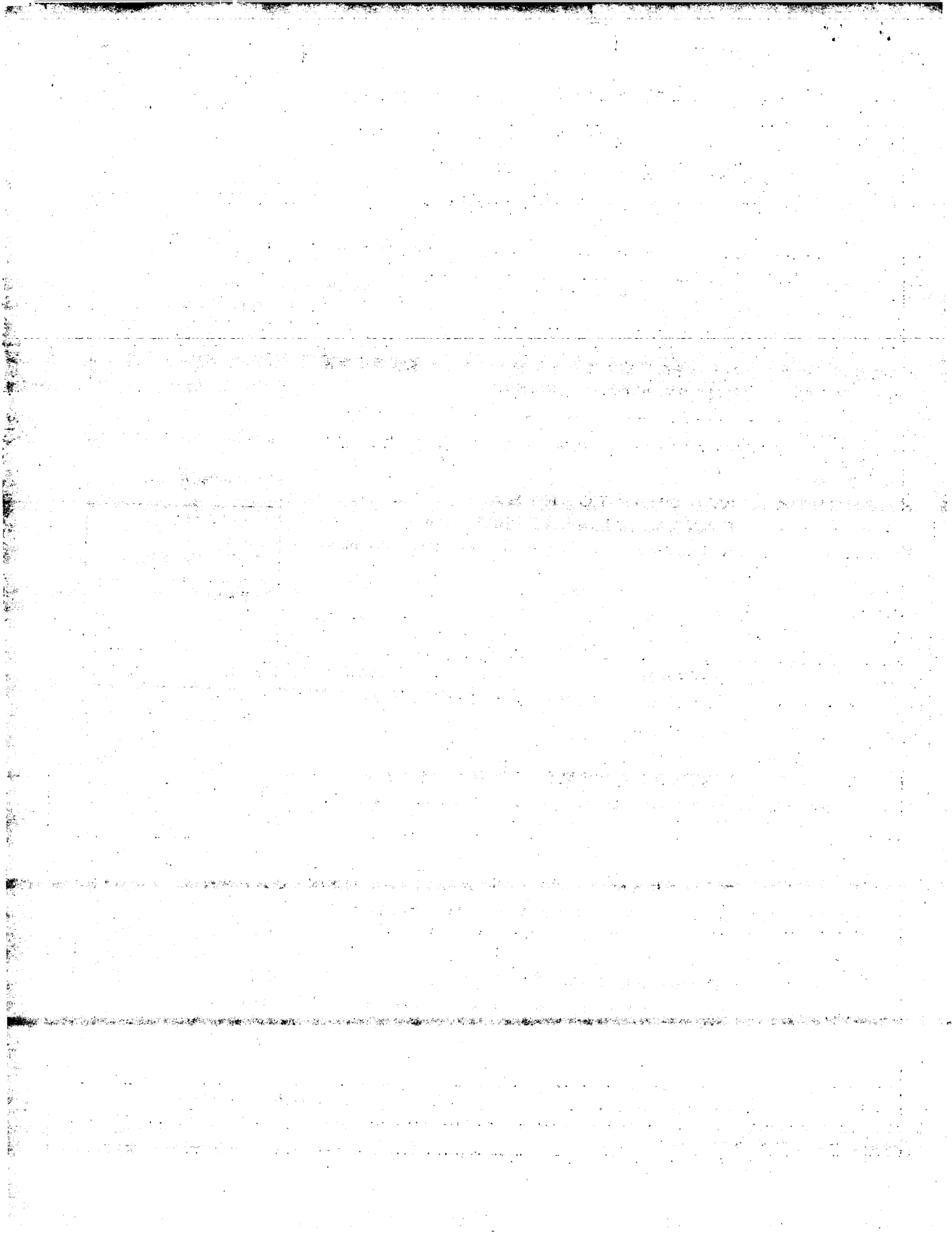
国籍 (国名): 日本国 JAPAN	住所 (国名): 日本国 JAPAN
--------------------	--------------------

氏名 (名称) 及びあて名: (姓・名の順に記載; 法人は公式の完全な名称を記載; あて名は郵便番号及び国名も記載) 酒井 亮 SAKAI, Ryō 〒234-0054 日本国神奈川県横浜市港南区港南台9丁目14-7-203 14-7-203, Konandai 9-chome, Konan-ku, Yokohama-shi, Kanagawa 234-0054 Japan
---

国籍 (国名): 日本国 JAPAN	住所 (国名): 日本国 JAPAN
--------------------	--------------------

☒ その他の出願人が続葉に記載されている。

予備審査  
済





第2 出願人の氏名 出願人

この第2欄の続きを使用しないときは、この用紙を国際予備審査請求書に含めないこと。

氏名（名称）及びあて名：（姓・名の順に記載；法人は公式の完全な名称を記載；あて名は郵便番号及び国名も記載）

白川 康博 SHIRAKAWA, Yasuhiro  
 〒231-0801 日本国神奈川県横浜市中区新山下3丁目15-3-314  
 15-3-314, Shin-yamashita 3-chome, Naka-ku, Yokohama-shi,  
 Kanagawa 231-0801, Japan

国籍（国名）：

日本国 JAPAN

住所（国名）：

日本国 JAPAN

氏名（名称）及びあて名：（姓・名の順に記載；法人は公式の完全な名称を記載；あて名は郵便番号及び国名も記載）

居安 巨太郎 IYASU, Kotaro  
 〒183-0052 日本国東京都府中市新町1丁目77-28  
 77-28, Shin-machi 1-chome, Fuchu-shi, Tokyo 183-0052 Japan

国籍（国名）：

日本国 JAPAN

住所（国名）：

日本国 JAPAN

氏名（名称）及びあて名：（姓・名の順に記載；法人は公式の完全な名称を記載；あて名は郵便番号及び国名も記載）

鈴木 信和 SUZUKI, Nobukazu  
 〒143-0014 日本国東京都大田区大森中2丁目8-12  
 8-12, Omorinaka 2-chome, Ota-ku, Tokyo 143-0014 Japan

国籍（国名）：

日本国 JAPAN

住所（国名）：

日本国 JAPAN

氏名（名称）及びあて名：（姓・名の順に記載；法人は公式の完全な名称を記載；あて名は郵便番号及び国名も記載）

三井 久安 MITSUI, Hisayasu  
 〒226-0003 日本国神奈川県横浜市緑区鴨居1-15-1-202  
 1-15-1-202, Kamoi, Midori-ku, Yokohama-shi, Kanagawa 226-0003 Japan

国籍（国名）：

日本国 JAPAN

住所（国名）：

日本国 JAPAN

☐ その他の出願人が他の続葉に記載されている。



第III欄 代理人又は共通の代表者、通知のあて名

下記に記載された者は、☒ 代理人 又は ☐ 共通の代表者 として

- ☒ 既に選任された者であって、国際予備審査についても出願人を代理する者である。
- ☐ 今回新たに選任された者である。 先に選任されていた代理人又は共通の代表者は解任された。
- ☐ 既に選任された代理人又は共通の代表者に加えて、特に国際予備審査機関に対する手続きのために、今回新たに選任された者である。

氏名（名称）及びあて名：（姓・名の順に記載；法人は公式の完全な名称を記載；あて名は郵便番号及び国名も記載）

7784 弁理士 須山 佐一 SUYAMA Saichi  
〒101-0046  
日本国東京都千代田区神田多町2丁目1番地 神田東山ビル  
Kandahigashiyama BLDG.  
1, Kandatacho 2-chome, Chiyoda-ku, Tokyo 101-0046 Japan

電話番号：  
03-3252-7309  
ファクシミリ番号：  
03-3254-1039  
加入電話番号：

☐ 通知のためのあて名： 代理人又は共通の代表者が選任されておらず、上記枠内に特に通知が送付されるあて名を記載している場合は、レ印を付す。

第IV欄 国際予備審査に対する基本事項

補正に関する記述：\*

1. 出願人は、次のものを基礎として国際予備審査を開始することを希望する。

- ☐ 出願時の国際出願を基礎とすること。
- ☐ 明細書に関して ☐ 出願時のものを基礎とすること。  
☐ 特許協力条約第34条の規定に基づいてなされた補正を基礎とすること。
- ☐ 請求の範囲に関して ☐ 出願時のものを基礎とすること。  
☐ 特許協力条約第19条の規定に基づいてなされた補正（添付した説明書も含む）を基礎とすること。  
☐ 特許協力条約第34条の規定に基づいてなされた補正を基礎とすること。
- ☐ 図面に関して ☐ 出願時のものを基礎とすること。  
☐ 特許協力条約第34条の規定に基づいてなされた補正を基礎とすること。

2. ☐ 出願人は、特許協力条約第19条の規定に基づく請求の範囲について行った補正を無視し、かつ、取り消されたものとみなして開始することを希望する。

3. ☐ 出願人は、国際予備審査の開始が優先日から20月経過後まで延期されることを希望する（ただし、国際予備審査機関が、特許協力条約第19条の規定に基づき行われた補正書の写しの受領、又は当該補正を希望しない旨の出願人からの通知を受領した場合を除く（規則69.1(d)））。  
（この口は、特許協力条約第19条の規定に基づく期間が満了していない場合にのみ、レ印を付すことができる。）

\* 記入がない場合は、1) 補正がないか又は国際予備審査機関が補正（原本又は写し）を受領していないときは、出願時の国際出願を基礎に予備審査が開始され、2) 国際予備審査機関が、見解書又は予備審査報告書の作成開始前に補正（原本又は写し）を受領したときは、これらの補正を考慮して予備審査が開始又は続行される。

国際予備審査を行うための言語は、日本語 であり、

- ☒ 国際出願の提出時の言語である。
- ☐ 国際調査のために提出した翻訳文の言語である。
- ☐ 国際出願の公開の言語である。
- ☐ 国際予備審査の目的のために提出した翻訳文の言語である。

第V欄 「国」の選択

出願人は、選択資格のある全ての指定国（即ち、既に出願人によって指定されており、かつ特許協力条約第II章に拘束されている国）を選択する。

ただし、出願人は次の国の選択を希望しない。： .....



## 第VI欄 照合欄

この国際予備審査請求書には、国際予備審査のために、第IVに記載する言語による書類が添付されている。

## 国際予備審査機関記入欄

受 領

未 受 領

1. 国際出願の翻訳文・・・・・・・・・・・・・・・・・・

枚

☐☐

2. 特許協力条約第34条の規定に基づく補正書・・・・・・・・

枚

☐☐3. 特許協力条約第19条の規定に基づく補正書  
(又は、要求された場合は翻訳文)の写し・・・・・・・・

枚

☐☐4. 特許協力条約第19条の規定に基づく説明書  
(又は、要求された場合は翻訳文)の写し・・・・・・・・

枚

☐☐

5. 書簡・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・

枚

☐☐

6. その他 (書類名を具体的に記載する) :

枚

☐☐

この国際予備審査請求書には、さらに下記の書類が添付されている。

1. ☒ 手数料計算用紙3. ☐ 包括委任状の写し☒ 総付した手数料に相当する特許印紙を  
貼付した書面4. ☐ 記名押印 (署名) に関する説明書☒ 国際事務局の口座への振込を証明する書面5. ☐ スクレオチド又はアミノ酸配列表  
(又は、スクレオチド又はアミノ酸配列表)2. ☐ 別個の記名押印された委任状6. ☐ その他 (書類名を具体的に記載する) :

## 第VII欄 提出者の記名押印

各人の氏名 (名称) を記載し、その次に押印する。

須 山 佐 一



## 国際予備審査機関記入欄

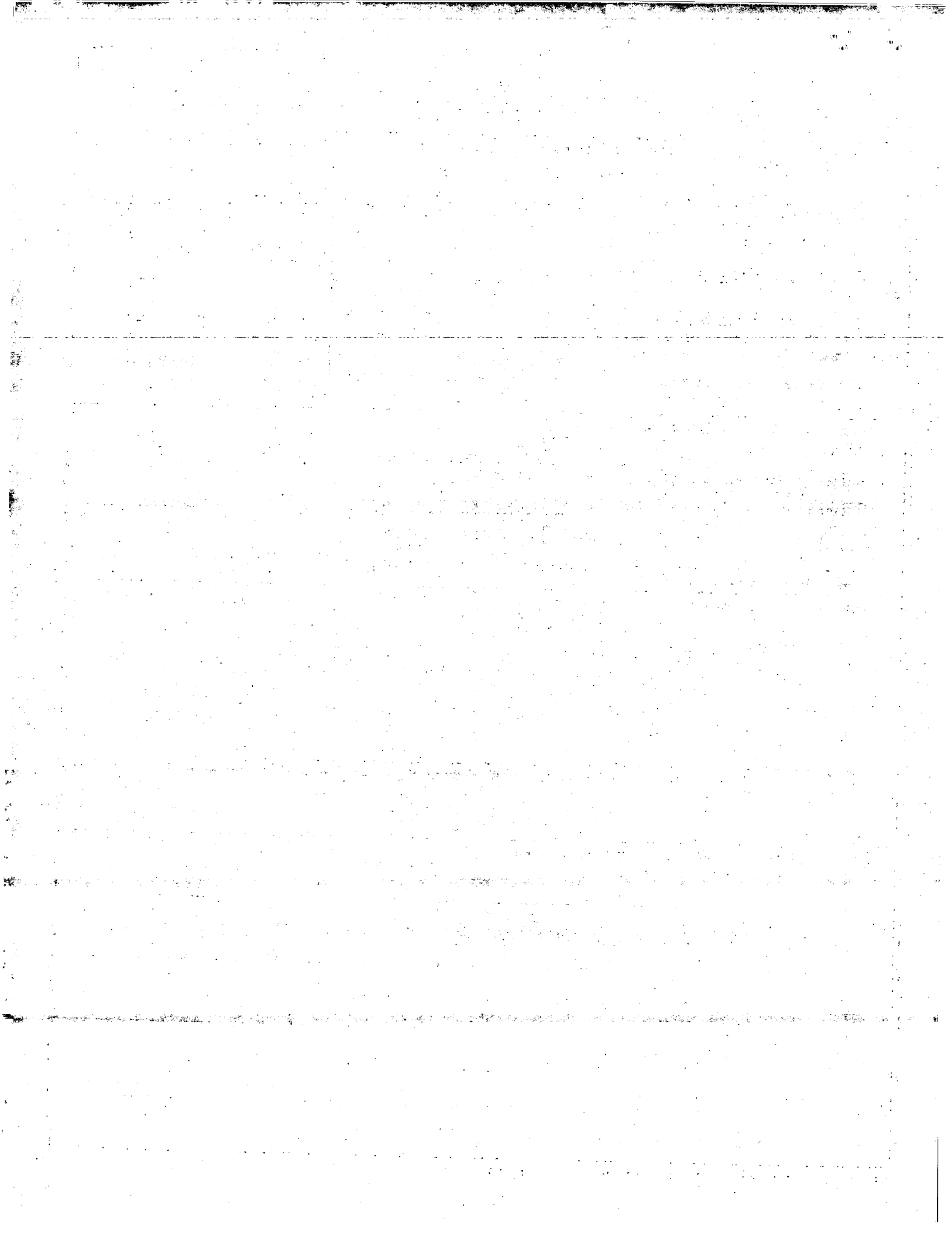
1. 国際予備審査請求書の実際の受理の日

2. 規則 60.1(b)の規定による国際予備審査請求書の受理の日の訂正後の日付

3. ☐ 優先日から19月を経過後の国際予備審査請求書の受理。ただし、以下の4、5の項目にはあてはまらない。☐ 出願人に通知した。4. ☐ 規則 80.5により延長が認められている優先日から19月の期間内の国際予備審査請求書の受理5. ☐ 優先日から19月を経過後の国際予備審査請求書の受理であるが規則82により認められる。

## 国際事務局記入欄

国際予備審査請求書の国際予備審査機関からの受領の日:



P C T

手 数 料 計 算 用 紙

国 際 予 備 審 査 請 求 書 の 附 属 書

国際出願番号

PCT/JP00/04007

出願人又は代理人の書類記号

FTY0008-PCT

国際予備審査機関記入欄

国際予備審査機関の日付印

出願人

株式会社 東芝

## 所定の手数料の計算

1. 特許協力条約に基づく国際出願等に関する法律（国内法）  
第18条第1項第4号の規定による手数料  
（予備審査請求料）（注1）

28,000 円 P

2. 取扱手数料（注2）

14,600 円 H

3. 所定の手数料の合計

P及びHに記入した金額を加算し、合計額を合計に記入

42,600 円

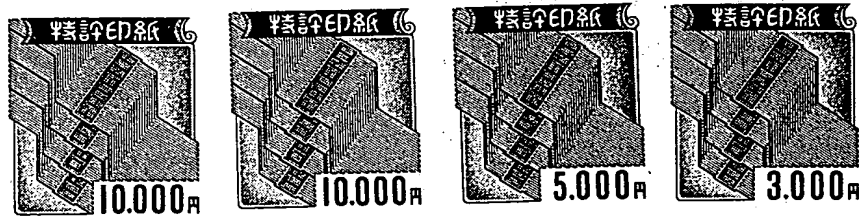
合 計

（注1）法第18条第1項第4号の規定による手数料については、特許印紙をもって納付しなければならない。

（注2）取扱手数料については、国際予備審査機関である日本国特許庁の長官が告示する国際事務局の口座への振り込みを証明する書面を提出することにより納付しなければならない。







予備審査手数料 28,000円



## ご利用明細

本日はご来店いただきありがとうございます。

年月日	時刻	取扱店番	銀行番号	支店番号	口座番号	印紙税申告納付につき贈町
121215	09.30	10105				
お取引内容	お取引金額	お取引口座	残高	お取扱金額		
お振込	¥14,600*			500円 100円 50円 10円 5円 1円 * * * * *		
ご案内 お受取人 東京三菱銀行 内幸町支店 普通 0473286 WIPO-PCT GENEVA様 ご依頼人 サクラコクサイトツキヨシムシヨ スヤマサイチ様 03-3254-1039 税込手数料 105円を いただきました						

普通預金よりも金利がおトクで  
出し入れ自由、便利な預金です。  
東京三菱のスーパー貯蓄 **ライン**

詳しくは  
裏面へ!

- 残高欄の金額は決済未済の証券類を含んでいます。
- 残高の頭部に「-」がある場合は、お借入れ残高を表わします。

 東京三菱銀行

取扱手数料 14,600円



F10008-PC7



# あて名変更届

特許庁長官 殿

1. 国際出願の表示 PCT/JPO0/04007

2. 出 願 人

名 称 株式会社 東芝

KABUSHIKI KAISHA TOSHIBA

あて名 〒105-8001

日本国東京都港区芝浦一丁目1番1号

1-1, Shibaura 1-chome, Minato-ku,

Tokyo 105-8001 JAPAN

国 籍 日本国 Japan

住 所 日本国 Japan

3. あて名を変更した者

事件との関係 出願人

名 称 株式会社 東芝

KABUSHIKI KAISHA TOSHIBA

旧あて名 〒212-0013

日本国神奈川県川崎市幸区堀川町72番地

72, Horikawa-cho, Saiwai-ku, Kawasaki-shi,

Kanagawa 212-0013 JAPAN

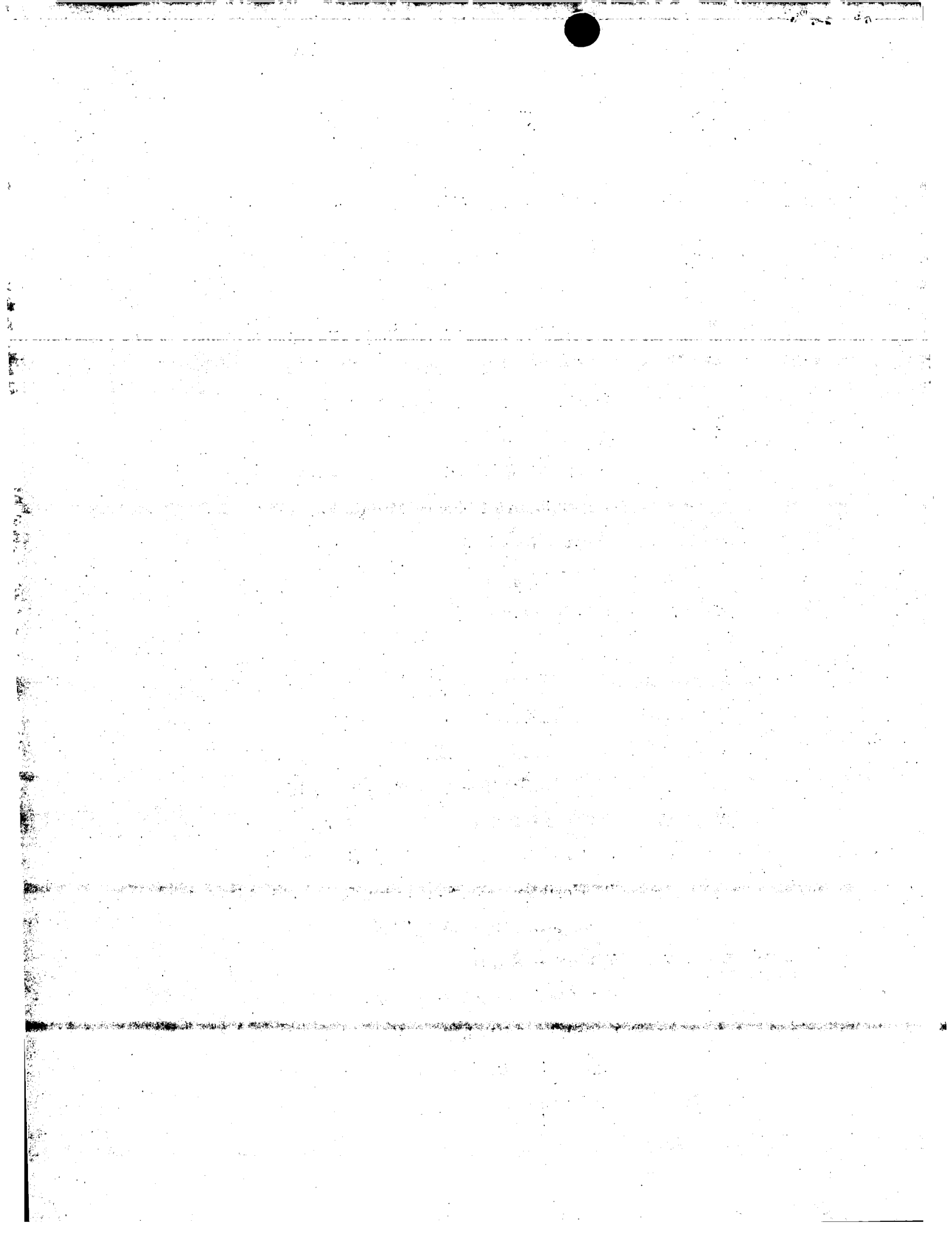
新あて名 〒105-8001

日本国東京都港区芝浦一丁目1番1号

1-1, Shibaura 1-chome, Minato-ku,

Tokyo 105-8001 JAPAN

国 籍 日本国 Japan



住 所 日本国 Japan

4. 代 理 人

氏 名 (7784) 弁理士 須 山 佐 一



SUYAMA Saichi

あて名 〒101-0046

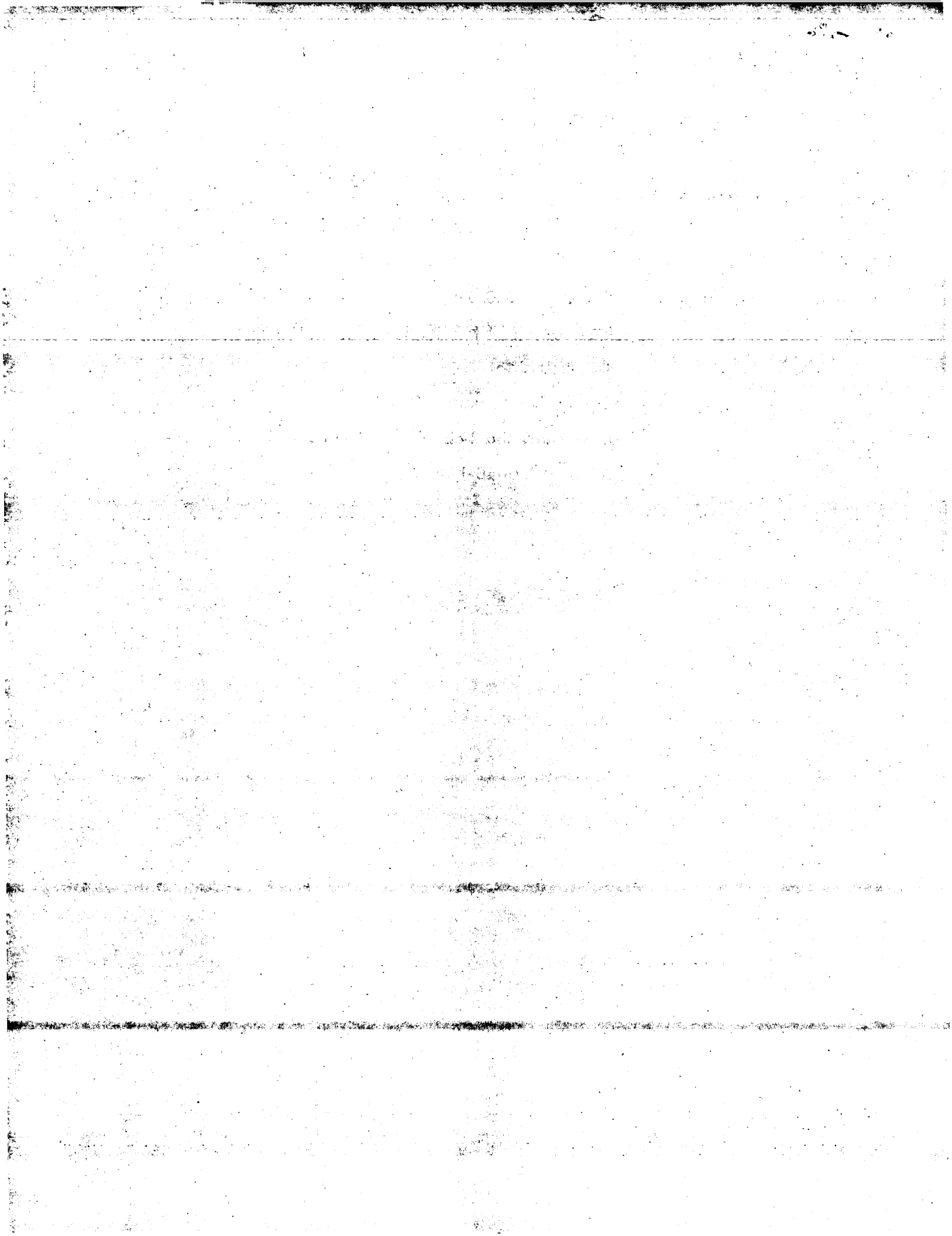
日本国東京都千代田区神田多町2丁目1番地

神田東山ビル

Kandahigashiyama Bldg.,

1, Kandatacho 2-chome, Chiyoda-ku,

Tokyo 101-0046 JAPAN





# 特許協力条約

発信人 日本国特許庁（受理官庁）

出願人代理人

須山 佐一

殿

あて名

〒101-0046

東京都千代田区神田多町2丁目1番地 神田  
東山ビル サクラ国際特許事務所

PCT/JP00/04007

RO105

P C T

RECEIVED

006.28

SAKURA

## 国際出願番号及び 国際出願日の通知書

（法施行規則第22条、第23条）  
〔PCT規則20.5(c)〕

発送日（日．月．年）

27.06.00

出願人又は代理人

の書類記号

FTY0008-PCT

重 要 な 通 知

国際出願番号

PCT/JP00/04007

国際出願日（日．月．年）

20.06.00

優先日（日．月．年）

21.06.99

出願人（氏名又は名称）

株式会社東芝

1. この国際出願は、上記の国際出願番号及び国際出願日が付与されたことを通知する。

記録原本は、27日06月00年 に国際事務局に送付した。

### 注 意

- 国際出願番号は、特許協力条約を表示する「PCT」の文字、斜線、受理官庁を表示する2文字コード（日本の場合JP）、西暦年の最後から2桁の数字、斜線、及び5桁の数字からなっています。
- 国際出願日は、「特許協力条約に基づく国際出願に関する法律」第4条第1項の要件を満たした国際出願に付与されます。
- あて名等を変更したときは、速やかにあて名の変更届等を提出して下さい。
- 電子計算機による漢字処理のため、漢字の一部を当用漢字、又は、仮名に置き換えて表現してある場合もありますので御了承下さい。
- この通知に記載された出願人のあて名、氏名（名称）に誤りがあるときは申出により訂正します。
- 国際事務局は、受理官庁から記録原本を受領した場合には、出願人にその旨を速やかに通知（様式PCT/IB/301）する。記録原本を優先日から14箇月が満了しても受領していないときは、国際事務局は出願人にその旨を通知する。〔PCT規則22.1(c)〕

名称及びあて名

日本国特許庁（RO/JP）

郵便番号 100-8915 TEL03-3592-1308

日本国東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

様式PCT/RO/105（1998年7月）

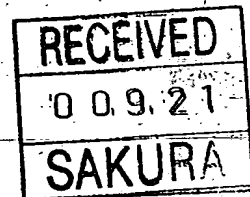
権限のある職員

特 許 庁 長 官



特 許 協 力 条 約

発信人 日本国特許庁 (国際調査機関)



出願人代理人 須山 佐一
あて名 殿 〒 101-0046 東京都千代田区神田多町2丁目1番地 神田東山ビル

PCT

国際調査報告又は国際調査報告を作成しない旨  
の決定の送付の通知書

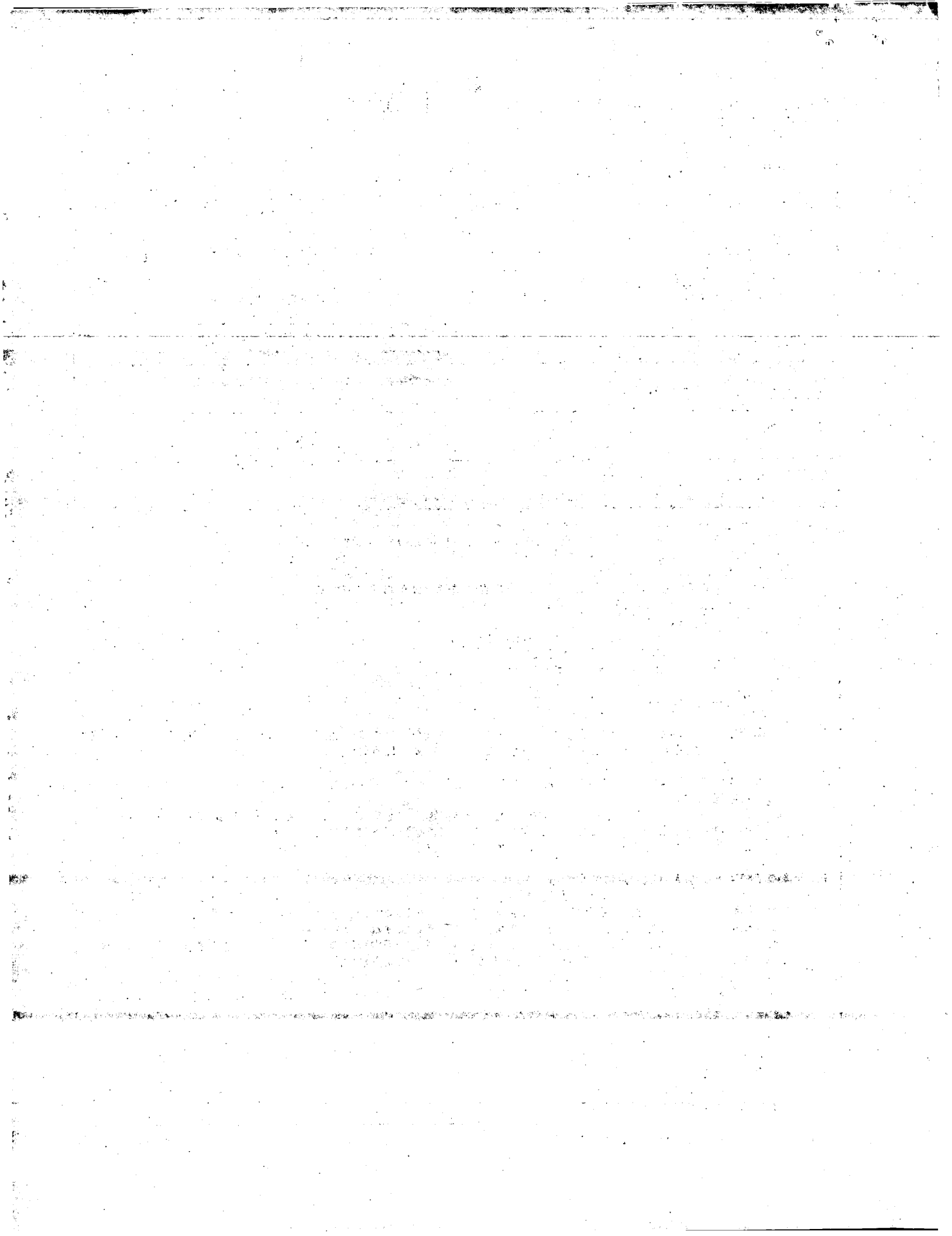
(法施行規則第41条)  
(PCT規則44.1)

発送日  
(日.月.年) 19.09.00

出願人又は代理人 の書類記号 FTY0008-PCT	今後の手続きについては、下記1及び4を参照。
国際出願番号 PCT/JP00/04007	国際出願日 (日.月.年) 20.06.00
出願人 (氏名又は名称) 株式会社 東芝	

- ☒ 国際調査報告が作成されたこと、及びこの送付書とともに送付することを、出願人に通知する。  
PCT 19条の規定に基づく補正書及び説明書の提出  
出願人は、国際出願の請求の範囲を補正することができる (PCT規則46参照)。  
いつ 補正書の提出期間は、通常国際調査報告の送付の日から2月である。  
詳細については添付用紙の備考を参照すること。  
どこへ 直接次の場所へ  
The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Genève 20, Switzerland  
Facsimile No.: (41-22) 740.14.35  
詳細な手続については、添付用紙の備考を参照すること。
- ☐ 国際調査報告が作成されないこと、及び法第8条第2項 (PCT 17条(2)(a)) の規定による国際調査報告を作成しない旨の決定をこの送付書とともに送付することを、出願人に通知する。
- ☐ 法施行規則第44条 (PCT規則40.2) に規定する追加手数料の納付に対する異議の申立てに関して、出願人に下記の点を通知する。  
☐ 異議の申立てと当該異議についての決定を、その異議の申し立てと当該異議についての決定の両方を指定官庁へ送付することを求める出願人の請求とともに、国際事務局へ送付した。  
☐ 当該異議についての決定は、まだ行われていない。決定されしだい出願人に通知する。
- 今後の手続： 出願人は次の点に注意すること。  
優先日から18ヶ月経過後、国際出願は国際事務局によりすみやかに国際公開される。出願人が公開の延期を望むときは、国際出願又は優先権の主張の取下げの通知がPCT規則90の2.1及び90の2.3にそれぞれ規定されているように、国際公開の事務的な準備が完了する前に国際事務局に到達しなければならない。  
出願人が優先日から30月まで (官庁によってはもっと遅く) 国内段階の開始を延期することを望むときは、優先日から19月以内に、国際予備審査の請求書が提出されなければならない。  
国際予備審査の請求書若しくは、後にする選択により優先日から19箇月以内に選択しなかった又は第II章に拘束されないため選択できなかったすべての指定官庁に対しては優先日から20月以内に、国内段階の開始のための所定手続を取らなければならない。

名称及びあて名 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	権限のある職員 特 許 庁 長 官 電話番号 03-3581-1101 内線 3477	4X 9541
---	---	---------



## 注 意

1. 国際調査報告の発送日から起算する条約第19条(1)及び規則46.1に従う国際事務局への補正期間に注意してください。
2. 条約22条(2)に規定する期間に注意してください。

### 3. 文献の写しの請求について

#### 国際調査報告に記載した文献の複写

特許庁にこれらの引用文献の写しを請求することもできますが、日本特許情報機構でもこれらの引用文献の複写物を販売しています。日本特許情報機構に引用文献の複写物を請求する場合は下記の点に注意してください。

#### 〔申込方法〕

(1) 特許(実用新案・意匠)公報については、下記の点を明記してください。

○特許・実用新案及び意匠の種類

○出願公告又は出願公開の年次及び番号(又は特許番号、登録番号)

○必要部数

(2) 公報以外の文献の場合は、下記の点に注意してください。

○国際調査報告の写しを添付してください(返却します)。

#### 〔申込み及び照会先〕

〒135 東京都江東区東陽4-1-7 佐藤ダイヤビル

財団法人 日本特許情報機構 サービス課

TEL 03-5690-3900

注意 特許庁に対して文献の写しの請求をすることができる期間は、国際出願日から7年です。



## 様式PCT/ISA/220の備考

この備考は、PCT19条の規定に基づく補正書の提出に関する基本的な指示を与えるためのものである。この備考は特許協力条約並びにこの条約に基づく規則及び実施細則の規定に基づいている。この備考とそれらの規定とが相違する場合には、後者が適用される。詳細な情報については、WIPOの出版物であるPCT出願人の手引も参照すること。

### PCT19条の規定に基づく補正書の提出に関する指示

出願人は、国際調査報告を受領した後、国際出願の請求の範囲を補正する機会が一回ある。しかし、国際出願のすべての部分（請求の範囲、明細書及び図面）が、国際予備審査の手續においても補正できるもので、例えば出願人が仮保護のために補正書を公開することを希望する場合又は国際公開前に請求の範囲を補正する別の理由がある場合を除き、通常PCT19条の規定に基づく補正書を提出する必要はないことを強調しておく。さらに、仮保護は一部の国のみで与えられるだけであることも強調しておく。

#### 補正の対象となるもの

PCT19条の規定により請求の範囲のみ補正することができる。

国際段階においてPCT34条の規定に基づく国際予備審査の手續において請求の範囲を（更に）補正することができる。

明細書及び図面は、PCT34条の規定に基づく国際予備審査の手續においてのみ補正することができる。

国内段階に移行する際、PCT28条（又はPCT41条）の規定により、国際出願のすべての部分を補正することができる。

#### いつ

国際調査報告の送付の日から2月又は優先日から16月の内どちらか遅く満了するほうの期間内。しかし、その期間に満了後であっても国際公開の技術的な準備の完了前に国際事務局が補正を受領した場合には、その補正書は、期間内に受理されたものとみなすことを強調しておく（PCT規則46.1）。

#### 補正書を提出すべきところ

補正書は、国際事務局のみに提出でき、受理官庁又は国際調査機関には提出してはいけない（PCT規則46.2）。国際予備審査の請求書を提出した／する場合については、以下を参照すること。

#### どのように

1以上の請求の範囲の削除、1以上の新たな請求の範囲の追加、又は1以上の請求の範囲の記載の補正による。

差替え用紙は、補正の結果、出願当初の用紙と相違する請求の範囲の各用紙毎に提出する。

差替え用紙に記載されているすべての請求の範囲には、アラビア数字を付さなければならない。請求の範囲を削除する場合、その他の請求の範囲の番号を付け直す必要はない。請求の範囲の番号を付け直す場合には、連続番号で付け直すなければならない（PCT実施細則第205号(b)）。

補正は国際公開の言語で行う。

#### 補正書にどのような書類を添付しなければならないか

##### 書簡（PCT実施細則第205号(b)）

補正書には書簡を添付しなければならない。

書簡は国際出願及び補正された請求の範囲とともに公開されることはない。これを「PCT19条(1)に規定する説明書」と混同してはならない（「PCT19条(1)に規定する説明書」については、以下を参照）。

書簡は、英語又は仏語を選択しなければならない。ただし、国際出願の言語が英語の場合、書簡は英語で、仏語の場合、書簡は仏語で記載しなければならない。

書簡には、出願時の請求の範囲と補正された請求の範囲との相違について表示しなければならない。特に、国際出願に記載した各請求の範囲との関連で次の表示（2以上の請求の範囲についての同一の表示する場合は、まとめることができる。）をしなければならない。

- (i) この請求の範囲は変更しない。
- (ii) この請求の範囲は削除する。
- (iii) この請求の範囲は追加である。
- (iv) この請求の範囲は出願時の1以上の請求の範囲と差し替える。
- (v) この請求の範囲は出願時の請求の範囲の分割の結果である。





次に、添付する書簡中での、補正についての説明の例を示す。

1. [請求の範囲の一部の補正によって請求の範囲の項数が48から51になった場合] :  
“請求の範囲1-29、31、32、34、35、37-48項は、同じ番号のもとに補正された請求の範囲と置き換えられた。請求の範囲30、33及び36項は変更なし。新たに請求の範囲49-51項が追加された。”
2. [請求の範囲の全部の補正によって請求の範囲の項数が15から11になった場合] :  
“請求の範囲1-15項は、補正された請求の範囲1-11項に置き換えられた。”
3. [原請求の範囲の項数が14で、補正が一部の請求の範囲の削除と新たな請求の範囲の追加を含む場合] :  
“請求の範囲1-6及び14項は変更なし。請求の範囲7-13は削除。新たに請求の範囲15、16及び17項を追加。”又は  
“請求の範囲7-13は削除。新たに請求の範囲15、16及び17項を追加。その他の全ての請求の範囲は変更なし。”
4. [各種の補正がある場合] :  
“請求の範囲1-10項は変更なし。請求の範囲11-13、18及び19項は削除。請求の範囲14、15及び16項は補正された請求の範囲14項に置き換えられた。請求の範囲17項は補正された請求の範囲15、16及び17項に分割された。新たに請求の範囲20及び21項が追加された。”

“PCT19条(1)の規定に基づく説明書”(PCT規則46.4)

補正書には、補正並びにその補正が明細書及び図面に与える影響についての説明書を提出することができる(明細書及び図面はPCT19条(1)の規定に基づいては補正できない)。

説明書は、国際出願及び補正された請求の範囲とともに公開される。

説明書は、国際公開の言語で作成しなければならない。

説明書は、簡潔でなければならない、英語の場合又は英語に翻訳した場合に500語を越えてはならない。

説明書は、出願時の請求の範囲と補正された請求の範囲との相違を示す書簡と混同してはならない。説明書を、その書簡に代えることはできない。説明書は別紙で提出しなければならない、見出しを付すものとし、その見出しは“PCT19条(1)の規定に基づく説明書”の語句を用いることが望ましい。

説明書には、国際調査報告又は国際調査報告に列記された文献との関連性に関して、これらを誹謗する意見を記載してはならない。国際調査報告に列記された特定の請求の範囲に関連する文献についての言及は、当該請求の範囲の補正に関してのみ行うことができる。

国際予備審査の請求書が提出されている場合

PCT19条の規定に基づく補正書及び添付する説明書の提出の時に国際予備審査の請求書が既に提出されている場合には、出願人は、補正書(及び説明書)を国際事務局に提出すると同時にその写し及び必要な場合、その翻訳文を国際予備審査機関にも提出することが望ましい(PCT規則55.3(a)、62.2の第1文を参照)。詳細は国際予備審査請求書(PCT/IPEA/401)の注意書参照。

国内段階に移行するための国際出願の翻訳に関して

国内段階に移行する際、PCT19条の規定に基づいて補正された請求の範囲の翻訳を出願時の請求の範囲の翻訳の代わりに又は追加して、指定官庁/選択官庁に提出しなければならないこともあるので、出願人は注意されたい。

指定官庁/選択官庁の詳細な要求については、PCT出願人の手引きの第II巻を参照。



PCT

国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条)  
[PCT18条、PCT規則43、44]

出願人又は代理人 FTY0008 の書類記号 -PCT	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220)及び下記5を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP00/04007	国際出願日 (日.月.年) 20.06.00	優先日 (日.月.年) 21.06.99
出願人(氏名又は名称) 株式会社 東芝		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。  
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 4 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

1. 国際調査報告の基礎

- a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。  
☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。
- b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。  
☐ この国際出願に含まれる書面による配列表  
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表  
☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。  
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

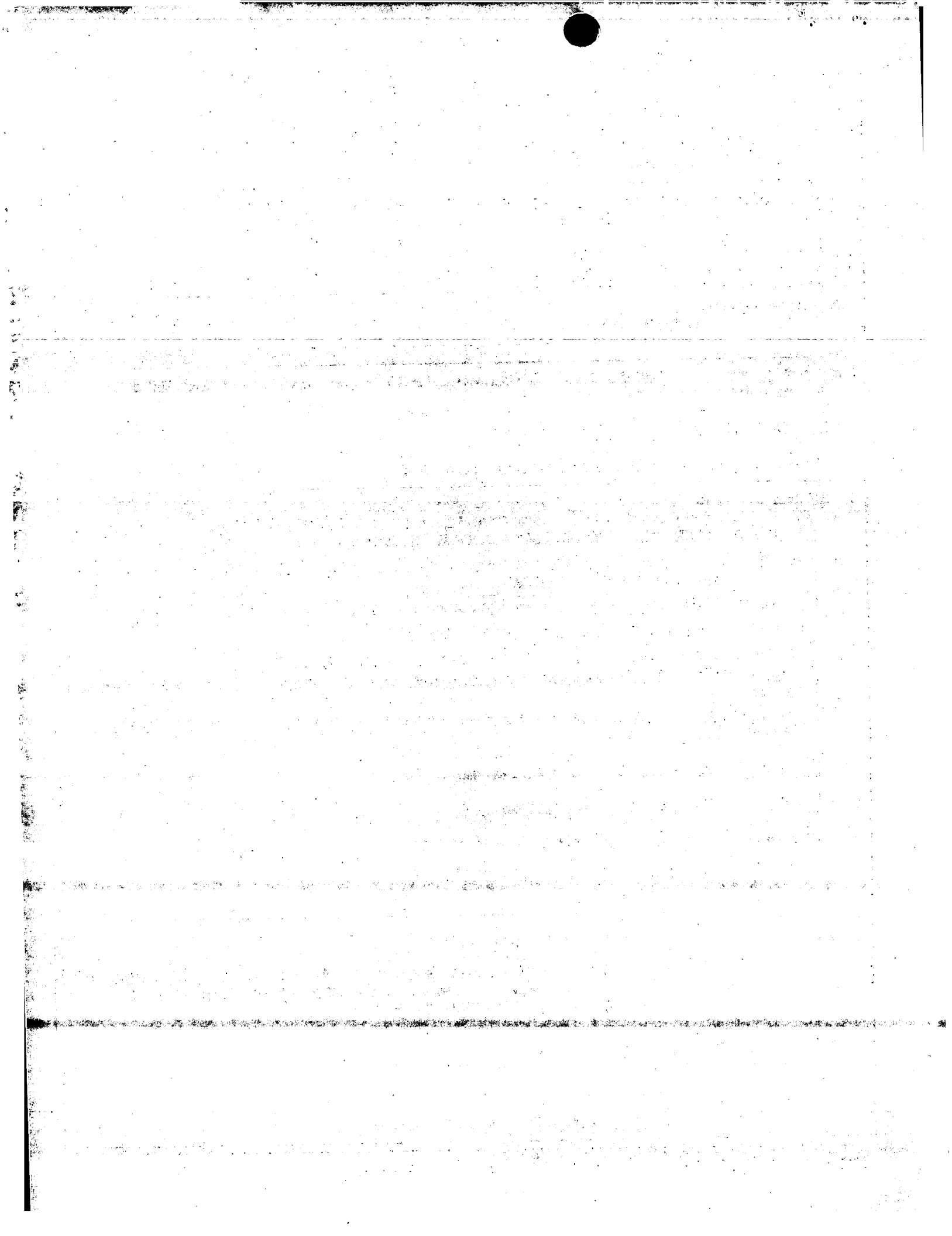
2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している(第II欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。  
☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☐ 出願人が提出したものを承認する。  
☒ 第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、  
 第 4 図とする。 ☒ 出願人が示したとおりである。 ☐ なし  
☐ 出願人は図を示さなかった。  
☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。



## 第Ⅲ欄 要約 (第1ページの5の続き)

本発明は、非水電解液二次電池に用いられる金属酸化物からなる正極活物質に関する。

金属酸化物の平均粒径に対して粒径が600%以上の粗大粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ金属酸化物の平均密度に対して密度が150%以上の高密度粒子の含有比率が質量比で1000 ppm以下にすることにより、電池性能や製造歩留まりを高めることができる。



A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))  
Int. Cl<sup>7</sup> H01M4/58, 10/40, 10/54

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))  
Int. Cl<sup>7</sup> H01M4/36-4/62, 10/36-10/40, 10/54

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年  
日本国公開実用新案公報 1971-2000年  
日本国実用新案登録公報 1996-2000年  
日本国登録実用新案公報 1994-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)  
JICST

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	JP, 11-149925, A (富士フイルムセルテック株式会社), 2. 6月. 1999 (02. 06. 99), 請求項 1 - 8 (ファミリーなし)	1-15 16-29
X Y	JP, 11-135119, A (松下電器産業株式会社), 21. 5月. 1999 (21. 05. 99), 請求項 1 - 3, 6 (ファミリーなし)	1-15 16-29
Y	JP, 8-22846, A (富士写真フイルム株式会社), 23. 1月. 1996 (23. 01. 96) , 請求項 1 (ファミリーなし)	16-29

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

\* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献  
「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日  
12. 09. 00

国際調査報告の発送日

19.09.00

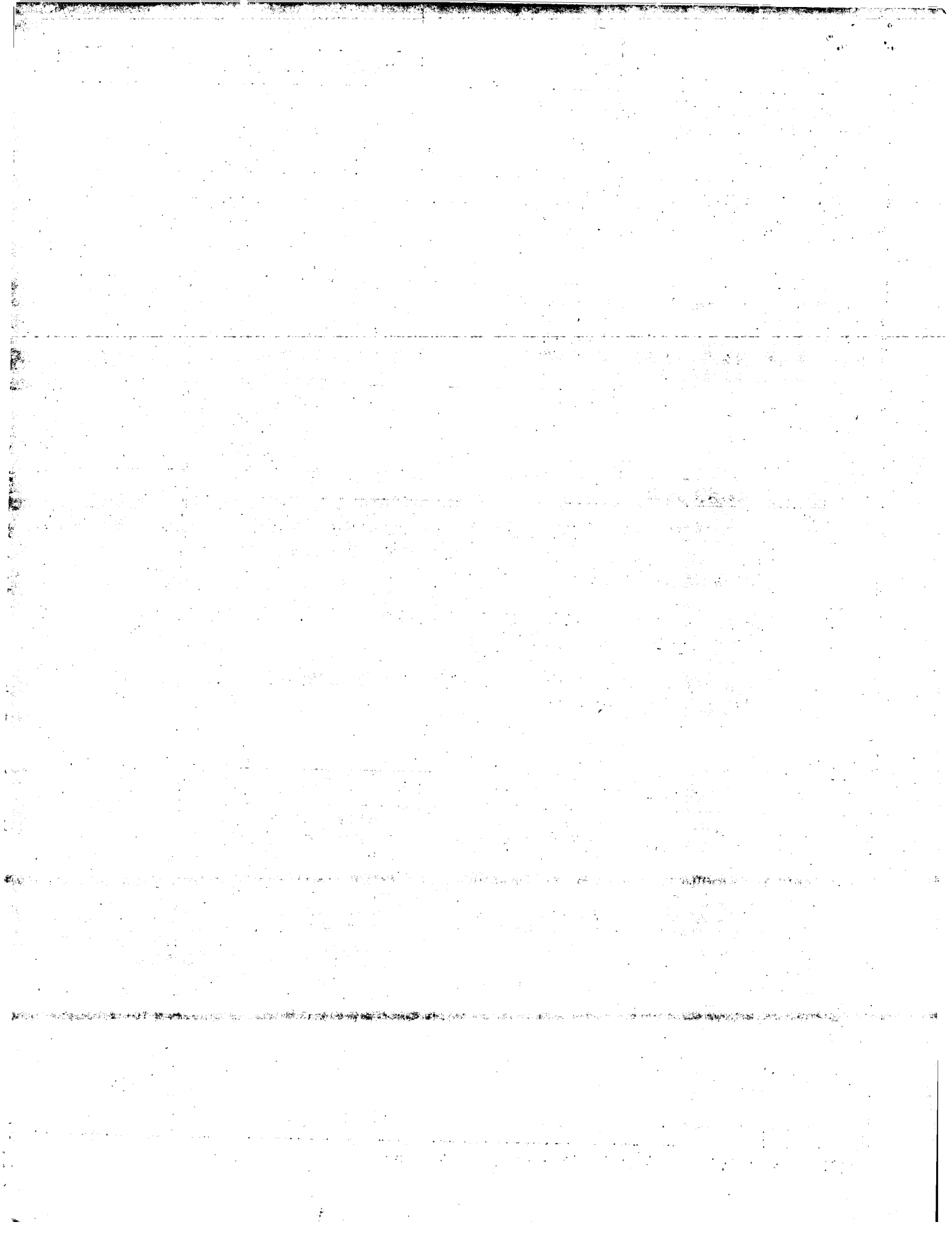
国際調査機関の名称及びあて先  
日本国特許庁 (ISA/JP)  
郵便番号 100-8915  
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)  
高木 正博



4X 9541

電話番号 03-3581-1101 内線 3477





様式PCT/ISA/210 (第2ページの続き) (1998年7月)



## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

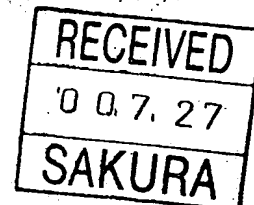
From the INTERNATIONAL BUREAU

NOTIFICATION OF RECEIPT OF  
RECORD COPY

(PCT Rule 24.2(a))

To:

SUYAMA, Saichi  
Kandahigashiyama Bldg.  
1, Kandatacho 2-chome  
Chiyoda-ku, Tokyo 101-0046  
JAPON



Date of mailing (day/month/year) 18 July 2000 (18.07.00)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference FTY0008-PCT	International application No. PCT/JP00/04007

The applicant is hereby notified that the International Bureau has received the record copy of the international application as detailed below.

Name(s) of the applicant(s) and State(s) for which they are applicants:

KABUSHIKI KAISHA TOSHIBA (for all designated States except US)  
A&T BATTERY CORP. (for JP,KR)  
SAKAI, Ryo et al (for US)

International filing date : 20 June 2000 (20.06.00)  
Priority date(s) claimed : 21 June 1999 (21.06.99)  
13 August 1999 (13.08.99)

Date of receipt of the record copy  
by the International Bureau : 30 June 2000 (30.06.00)

List of designated Offices :

EP : AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE  
National : CA, CN, JP, KR, US

## ATTENTION

The applicant should carefully check the data appearing in this Notification. In case of any discrepancy between these data and the indications in the international application, the applicant should immediately inform the International Bureau.

In addition, the applicant's attention is drawn to the information contained in the Annex, relating to:

- ☒ time limits for entry into the national phase
- ☒ confirmation of precautionary designations
- ☒ requirements regarding priority documents

A copy of this Notification is being sent to the receiving Office and to the International Searching Authority.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland  Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer: Shinji IGARASHI  Telephone No. (41-22) 338.83.38
--	---



## INFORMATION ON TIME LIMITS FOR ENTERING THE NATIONAL PHASE

The applicant is reminded that the "national phase" must be entered before each of the designated Offices indicated in the Notification of Receipt of Record Copy (Form PCT/IB/301) by paying national fees and furnishing translations, as prescribed by the applicable national laws.

The time limit for performing these procedural acts is **20 MONTHS** from the priority date or, for those designated States which the applicant elects in a demand for international preliminary examination or in a later election, **30 MONTHS** from the priority date, provided that the election is made before the expiration of 19 months from the priority date. Some designated (or elected) Offices have fixed time limits which expire even later than 20 or 30 months from the priority date. In other Offices an extension of time or grace period, in some cases upon payment of an additional fee, is available.

In addition to these procedural acts, the applicant may also have to comply with other special requirements applicable in certain Offices. It is the applicant's responsibility to ensure that the necessary steps to enter the national phase are taken in a timely fashion. Most designated Offices do not issue reminders to applicants in connection with the entry into the national phase.

For detailed information about the procedural acts to be performed to enter the national phase before each designated Office, the applicable time limits and possible extensions of time or grace periods, and any other requirements, see the relevant Chapters of Volume II of the PCT Applicant's Guide. Information about the requirements for filing a demand for international preliminary examination is set out in Chapter IX of Volume I of the PCT Applicant's Guide.

GR and ES became bound by PCT Chapter II on 7 September 1996 and 6 September 1997, respectively, and may, therefore, be elected in a demand or a later election filed on or after 7 September 1996 and 6 September 1997, respectively, regardless of the filing date of the international application. (See second paragraph above.)

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

## CONFIRMATION OF PRECAUTIONARY DESIGNATIONS

This notification lists only specific designations made under Rule 4.9(a) in the request. It is important to check that these designations are correct. Errors in designations can be corrected where precautionary designations have been made under Rule 4.9(b). The applicant is hereby reminded that any precautionary designations may be confirmed according to Rule 4.9(c) before the expiration of 15 months from the priority date. If it is not confirmed, it will automatically be regarded as withdrawn by the applicant. There will be no reminder and no invitation. Confirmation of a designation consists of the filing of a notice specifying the designated State concerned (with an indication of the kind of protection or treatment desired) and the payment of the designation and confirmation fees. Confirmation must reach the receiving Office within the 15-month time limit.

## REQUIREMENTS REGARDING PRIORITY DOCUMENTS

For applicants who have not yet complied with the requirements regarding priority documents, the following is recalled.

Where the priority of an earlier national, regional or international application is claimed, the applicant must submit a copy of the said earlier application, certified by the authority with which it was filed ("the priority document") to the receiving Office (which will transmit it to the International Bureau) or directly to the International Bureau, before the expiration of 16 months from the priority date, provided that any such priority document may still be submitted to the International Bureau before that date of international publication of the international application, in which case that document will be considered to have been received by the International Bureau on the last day of the 16-month time limit (Rule 17.1(a)).

Where the priority document is issued by the receiving Office, the applicant may, instead of submitting the priority document, request the receiving Office to prepare and transmit the priority document to the International Bureau. Such request must be made before the expiration of the 16-month time limit and may be subjected by the receiving Office to the payment of a fee (Rule 17.1(b)).

If the priority document concerned is not submitted to the International Bureau or if the request to the receiving Office to prepare and transmit the priority document has not been made (and the corresponding fee, if any, paid) within the applicable time limit indicated under the preceding paragraphs, any designated State may disregard the priority claim, provided that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

Where several priorities are claimed, the priority date to be considered for the purposes of computing the 16-month time limit is the filing date of the earliest application whose priority is claimed.



## PARENT COOPERATION TREATY

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

NOTIFICATION CONCERNING  
SUBMISSION OR TRANSMITTAL  
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

To:

SUYAMA, Saichi  
Kandahigashiyama Bldg.  
1, Kandatacho 2-chome  
Chiyoda-ku, Tokyo 101-0046  
JAPON

RECEIVED  
0 0.10.24  
SAKURA

Date of mailing (day/month/year) 16 October 2000 (16.10.00)	
Applicant's or agent's file reference FTY0008-PCT	IMPORTANT NOTIFICATION
International application No. PCT/JP00/04007	International filing date (day/month/year) 20 June 2000 (20.06.00)
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 21 June 1999 (21.06.99)
Applicant KABUSHIKI KAISHA TOSHIBA et al	

1. The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
2. This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
3. An asterisk(\*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
4. The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
21 June 1999 (21.06.99)	11/174758	JP	12 Sept 2000 (12.09.00)
13 Augu 1999 (13.08.99)	11/229162	JP	12 Sept 2000 (12.09.00)

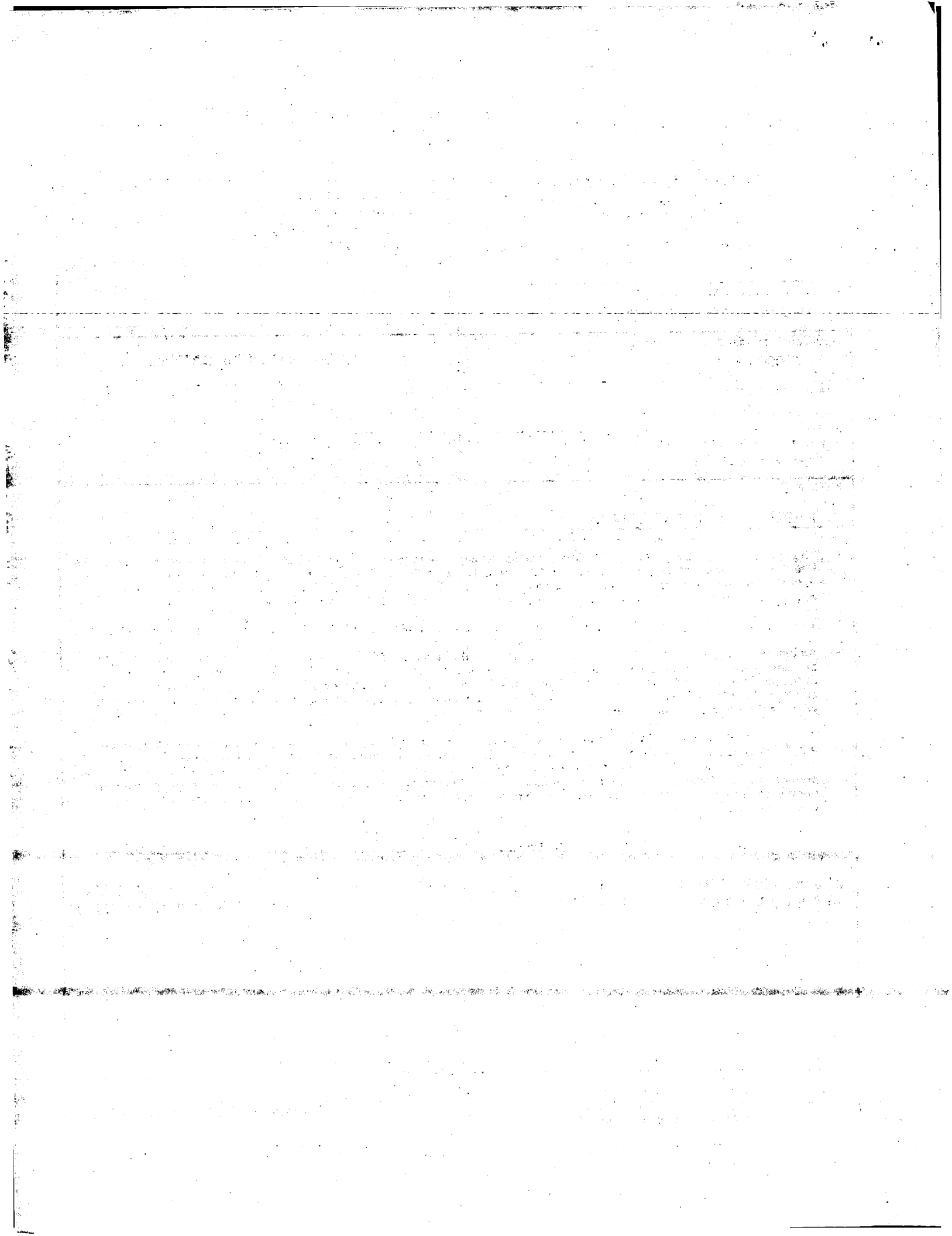
The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

Authorized officer

Tessadel PAMPLIEGA *Tdp*

Telephone No. (41-22) 338.83.38





# PATENT COOPERATION TREATY

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

## NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

To:

SUYAMA, Saichi  
Kandahigashiyama Bldg.  
1, Kandatacho 2-chome  
Chiyoda-ku, Tokyo 101-0046  
JAPON

RECEIVED

01.11.99

SAKURA

Date of mailing (day/month/year)

28 December 2000 (28.12.00)

Applicant's or agent's file reference

FTY0008-PCT

### IMPORTANT NOTICE

International application No.

PCT/JP00/04007

International filing date (day/month/year)

20 June 2000 (20.06.00)

Priority date (day/month/year)

21 June 1999 (21.06.99)

Applicant

KABUSHIKI KAISHA TOSHIBA et al

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:  
KR,US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:  
CA,CN,EP,JP

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on  
28 December 2000 (28.12.00) under No. WO 00/79621

### REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

### REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the national phase, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

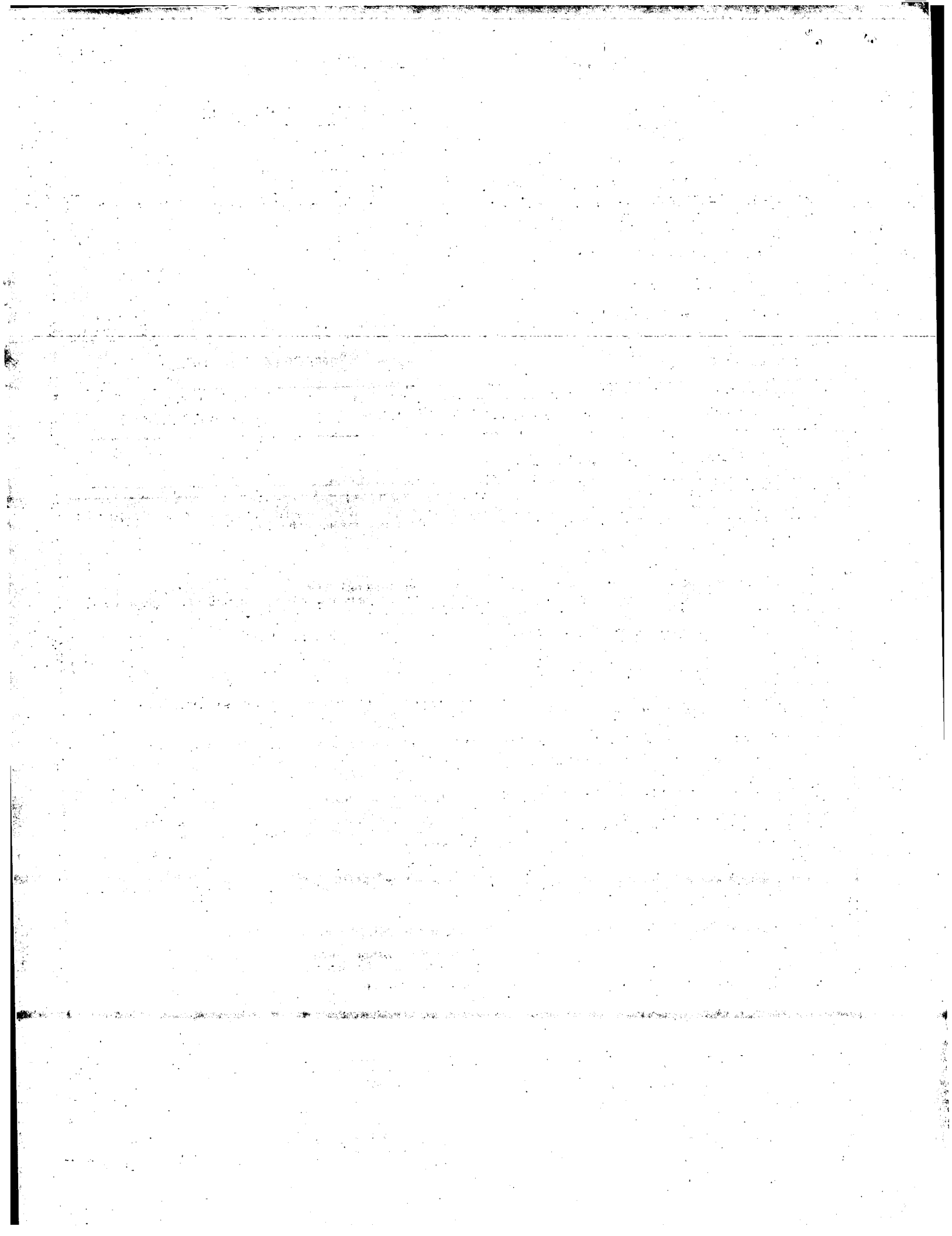
The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

Authorized officer

J. Zahra

Telephone No. (41-22) 338.83.38



## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

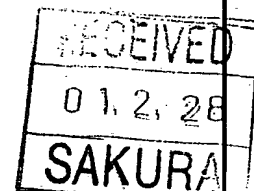
INFORMATION CONCERNING ELECTED  
OFFICES NOTIFIED OF THEIR ELECTION

(PCT Rule 61.3)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

SUYAMA, Saichi  
Kandahigashiyama Bldg.  
1, Kandatacho 2-chome  
Chiyoda-ku, Tokyo 101-0046  
JAPON



Date of mailing (day/month/year)

14 February 2001 (14.02.01)

Applicant's or agent's file reference

FTY0008-PCT

## IMPORTANT INFORMATION

International application No.

PCT/JP00/04007

International filing date (day/month/year)

20 June 2000 (20.06.00)

Priority date (day/month/year)

21 June 1999 (21.06.99)

Applicant

KABUSHIKI KAISHA TOSHIBA et al

1. The applicant is hereby informed that the International Bureau has, according to Article 31(7), notified each of the following Offices of its election:

EP : AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE  
National : CA, CN, JP, KR, US

2. The following Offices have waived the requirement for the notification of their election; the notification will be sent to them by the International Bureau only upon their request:

None

3. The applicant is reminded that he must enter the "national phase" before the expiration of 30 months from the priority date before each of the Offices listed above. This must be done by paying the national fee(s) and furnishing, if prescribed, a translation of the international application (Article 39(1)(a)), as well as, where applicable, by furnishing a translation of any annexes of the international preliminary examination report (Article 36(3)(b) and Rule 74.1).

Some offices have fixed time limits expiring later than the above-mentioned time limit. For detailed information about the applicable time limits and the acts to be performed upon entry into the national phase before a particular Office, see Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The entry into the European regional phase is postponed until 31 months from the priority date for all States designated for the purposes of obtaining a European patent.

The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

Authorized officer:

R. Forax

Telephone No. (41-22) 338.83.38

3836652

APPENDIX C. SUMMARY

The following table summarizes the results of the analysis of the data from the 1977-78 season.

The data were analyzed using the following methods: (1) Analysis of Variance (ANOVA), (2) Regression Analysis, and (3) Correlation Analysis.

The results of the analysis are presented in the following table:

The table shows the mean values for each variable, the standard deviation, and the results of the statistical tests.

The results of the analysis indicate that there is a significant difference between the two groups.

The results of the analysis indicate that there is a significant difference between the two groups.

The results of the analysis indicate that there is a significant difference between the two groups.

The results of the analysis indicate that there is a significant difference between the two groups.

The results of the analysis indicate that there is a significant difference between the two groups.

The results of the analysis indicate that there is a significant difference between the two groups.

The results of the analysis indicate that there is a significant difference between the two groups.

The results of the analysis indicate that there is a significant difference between the two groups.

The results of the analysis indicate that there is a significant difference between the two groups.

The results of the analysis indicate that there is a significant difference between the two groups.

The results of the analysis indicate that there is a significant difference between the two groups.

The results of the analysis indicate that there is a significant difference between the two groups.

The results of the analysis indicate that there is a significant difference between the two groups.

The results of the analysis indicate that there is a significant difference between the two groups.

The results of the analysis indicate that there is a significant difference between the two groups.

The results of the analysis indicate that there is a significant difference between the two groups.

The results of the analysis indicate that there is a significant difference between the two groups.

The results of the analysis indicate that there is a significant difference between the two groups.

The results of the analysis indicate that there is a significant difference between the two groups.

The results of the analysis indicate that there is a significant difference between the two groups.

The results of the analysis indicate that there is a significant difference between the two groups.

The results of the analysis indicate that there is a significant difference between the two groups.

The results of the analysis indicate that there is a significant difference between the two groups.

The results of the analysis indicate that there is a significant difference between the two groups.

The results of the analysis indicate that there is a significant difference between the two groups.

The results of the analysis indicate that there is a significant difference between the two groups.

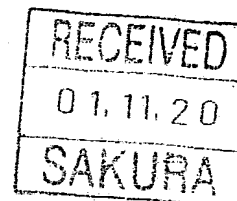
## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

NOTIFICATION OF THE RECORDING  
OF A CHANGE(PCT Rule 92bis.1 and  
Administrative Instructions, Section 422)

To:

SUYAMA, Saichi  
Kandahigashiyama Bldg.  
1, Kandatacho 2-chome  
Chiyoda-ku, Tokyo 101-0046  
JAPONDate of mailing (day/month/year)  
07 November 2001 (07.11.01)Applicant's or agent's file reference  
FTY0008-PCTInternational application No.  
PCT/JP00/04007

## IMPORTANT NOTIFICATION

International filing date (day/month/year)  
20 June 2000 (20.06.00)

## 1. The following indications appeared on record concerning:

☒ the applicant
 ☐ the inventor
 ☐ the agent
 ☐ the common representative

## Name and Address

KABUSHIKI KAISHA TOSHIBA  
72, Horikawa-cho, Saiwai-ku  
Kawasaki-shi, Kanagawa 212-0013  
JapanState of Nationality  
JPState of Residence  
JPTelephone No.  
03-3457-2512Facsimile No.  
03-3456-3229

Teleprinter No.

## 2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning:

☐ the person
 ☐ the name
 ☒ the address
 ☐ the nationality
 ☐ the residence

## Name and Address

KABUSHIKI KAISHA TOSHIBA  
1-1, Shibaura 1-chome  
Mihato-ku, Tokyo 105-8001  
JapanState of Nationality  
JPState of Residence  
JP

Telephone No.

Facsimile No.

Teleprinter No.

## 3. Further observations, if necessary:

## 4. A copy of this notification has been sent to:

☒ the receiving Office
 ☐ the International Searching Authority
 ☐ the International Preliminary Examining Authority
 ☐ the designated Offices concerned
 ☒ the elected Offices concerned
 ☐ other:
The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

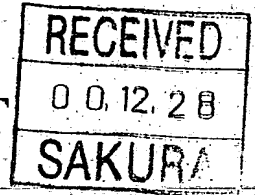
Authorized officer

Shinji IGARASHI

Telephone No.: (41-22)-338.83.38



# 許協力条約



発信人 日本国特許庁（国際予備審査機関）

出願人代理人

須山 佐一

P C T

あて名

〒101-0046

東京都千代田区神田多町2丁目1番地 神田  
東山ビル サクラ国際特許事務所

殿

## 国際予備審査請求書 の受理通知書

（法施行規則第54条第1項）

〔PCT規則59.3(e)及び61.1(b)第1文、  
実施細則601(a)〕

PCT/JP00/04007

PE402

発送日（日．月．年）

26.12.00

出願人又は代理人

の書類記号

FTY0008-PCT

重 要 な 通 知

国際出願番号

PCT/JP00/04007

国際出願日（日．月．年）

20.06.00

優先日（日．月．年）

21.06.99

出願人（氏名又は名称）

株式会社東芝

1. 国際予備審査機関は、国際出願の国際予備審査請求書を次の日に受理したことを通知する。

18日12月00年

2. この受理の日は次に示す日である。

- ☒ 管轄する国際予備審査機関が国際予備審査請求書を受理した日  
（PCT規則61.1(b)）
- ☐ 管轄する国際予備審査機関に代わって国際予備審査請求書を受理した日  
（PCT規則59.3(e)）
- ☐ 国際予備審査請求書の手続き補完書を管轄する国際予備審査機関が受理した日

3. ☐ 受理の日は、優先日から19箇月が経過している。

（注意） 国際予備審査請求書に記載した選択国の国内段階開始時期の優先日から30箇月まで（遅い官庁がある）の効果はない。（PCT第39条（1））したがって、国内段階移行の手続きは、優先日から20箇月以内（遅い官庁がある）に行わなければならない。（PCT第22条）  
詳細については、PCT出願人の手引き・第II巻」を参照すること。

☐ この内容は、口頭又は電話により次の日に行った連絡を確認するためのものである。

4. 上記の3に該当する場合に、この通知書の写しは国際事務局に送付した。

名称及びあて名

日本国特許庁（IPEA/JP）

郵便番号 100-8915 TEL03-3592-1308

日本国東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

様式PCT/IPEA/402（1998年7月）

権限のある職員

特 許 庁 長 官





特 許 協 力 条 約

発信人 日本国特許庁（国際予備審査機関）

出願人代理人

須山一佐

あて名

〒 101-0046

東京都千代田区神田多町2丁目1番地  
神田東山ビル

殿

PCT

国際予備審査報告の送付の通知書

(法施行規則第57条)  
〔PCT規則71.1〕

発送日

(日.月.年)

1 0.07.01

出願人又は代理人

の書類記号 FTY0008-PCT

重要な通知

国際出願番号

PCT/JPO0/04007

国際出願日

(日.月.年) 20.06.00

優先日

(日.月.年) 21.06.99

出願人（氏名又は名称）

株式会社 東芝

1. 国際予備審査機関は、この国際出願に関して国際予備審査報告及び付属書類が作成されている場合には、それらをこの送付書とともに送付することを、出願人に通知する。

2. 国際予備審査報告及び付属書類が作成されている場合には、すべての選択官庁に通知するために、それらの写しを国際事務局に送付する。

3. 選択官庁から要求があったときは、国際事務局は国際予備審査報告（付属書類を除く）の英語の翻訳文を作成し、それをその選択官庁に送付する。

4. 注 意

出願人は、各選択官庁に対し優先日から30月以内に（官庁によってはもっと遅く）所定の手続（翻訳文の提出及び国内手数料の支払い）をしなければならない（PCT39条（1））（様式PCT/IB/301とともに国際事務局から送付された注を参照）。

国際出願の翻訳文が選択官庁に提出された場合には、その翻訳文は、国際予備審査報告の付属書類の翻訳文を含まなければならない。

この翻訳文を作成し、関係する選択官庁に直接送付するのは出願人の責任である。

選択官庁が適用する期間及び要件の詳細については、PCT出願人の手引き第II巻を参照すること。

名称及びあて名

日本国特許庁（IPEA/JP）

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

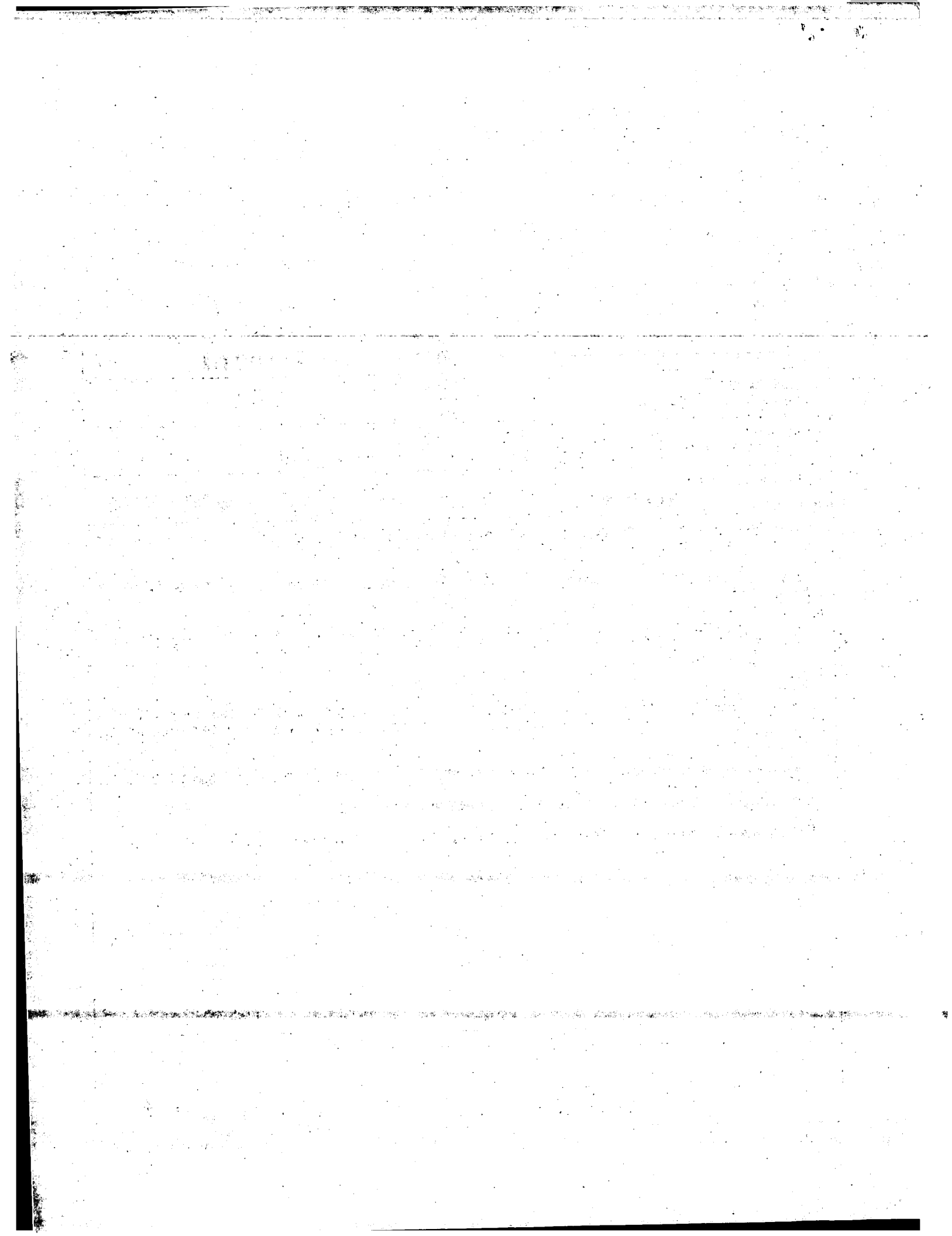
権限のある職員

特 許 庁 長 官

4X

9541

電話番号 03-3581-1101 内線 3477



## 注 意

### 1. 文献の写しの請求について

国際予備審査報告に記載された文献であって国際調査報告に記載されていない文献の複写

特許庁にこれらの引用文献の写しを請求することもできますが、独立行政法人工業所有権総合情報館（特許庁庁舎2階）で公報類の閲覧・複写および公報以外の文献複写等の取り扱いをしています。

〔担当及び照会先〕

〒100-0013 東京都千代田区霞が関3丁目4番3号（特許庁庁舎2階）

独立行政法人工業所有権総合情報館

【公報類】 閲覧部 TEL 03-3581-1101 内線3811~2

【公報以外】 資料部 TEL 03-3581-1101 内線3831~3

また、（財）日本特許情報機構でも取り扱いをしています。

これらの引用文献の複写を請求する場合は下記の点に注意してください。

〔申込方法〕

（1）特許（実用新案・意匠）公報については、下記の点を明記してください。

○特許・実用新案及び意匠の種類

○出願公告又は出願公開の年次及び番号（又は特許番号、登録番号）

○必要部数

（2）公報以外の文献の場合は、下記の点に注意してください。

○国際予備審査報告の写しを添付してください（返却します）。

〔申込み及び照会先〕

〒135-0016 東京都江東区東陽4-1-7 佐藤ビル

財団法人 日本特許情報機構 情報処理部業務課

TEL 03-3508-2313

注) 特許庁に対して文献の写しの請求をすることができる期間は、国際出願日から7年です。

2. 各選択官庁に対し、国際出願の写し（既に国際事務局から送達されている場合は除く）及びその所定の翻訳文を提出し、国内手数料を支払うことが必要となります。その期限については各国ごとに異なりますので注意してください。（条約第22条、第39条及び第64条(2)(a)(i)参照）

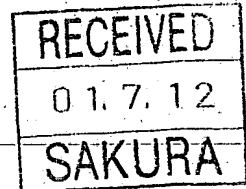
[The body of the document contains several paragraphs of text that are extremely faint and illegible due to severe degradation and noise. The text appears to be organized into sections, possibly separated by horizontal lines, but the specific content cannot be discerned.]

特 許 協 力 条 約

PCT

国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)  
[PCT36条及びPCT規則70]

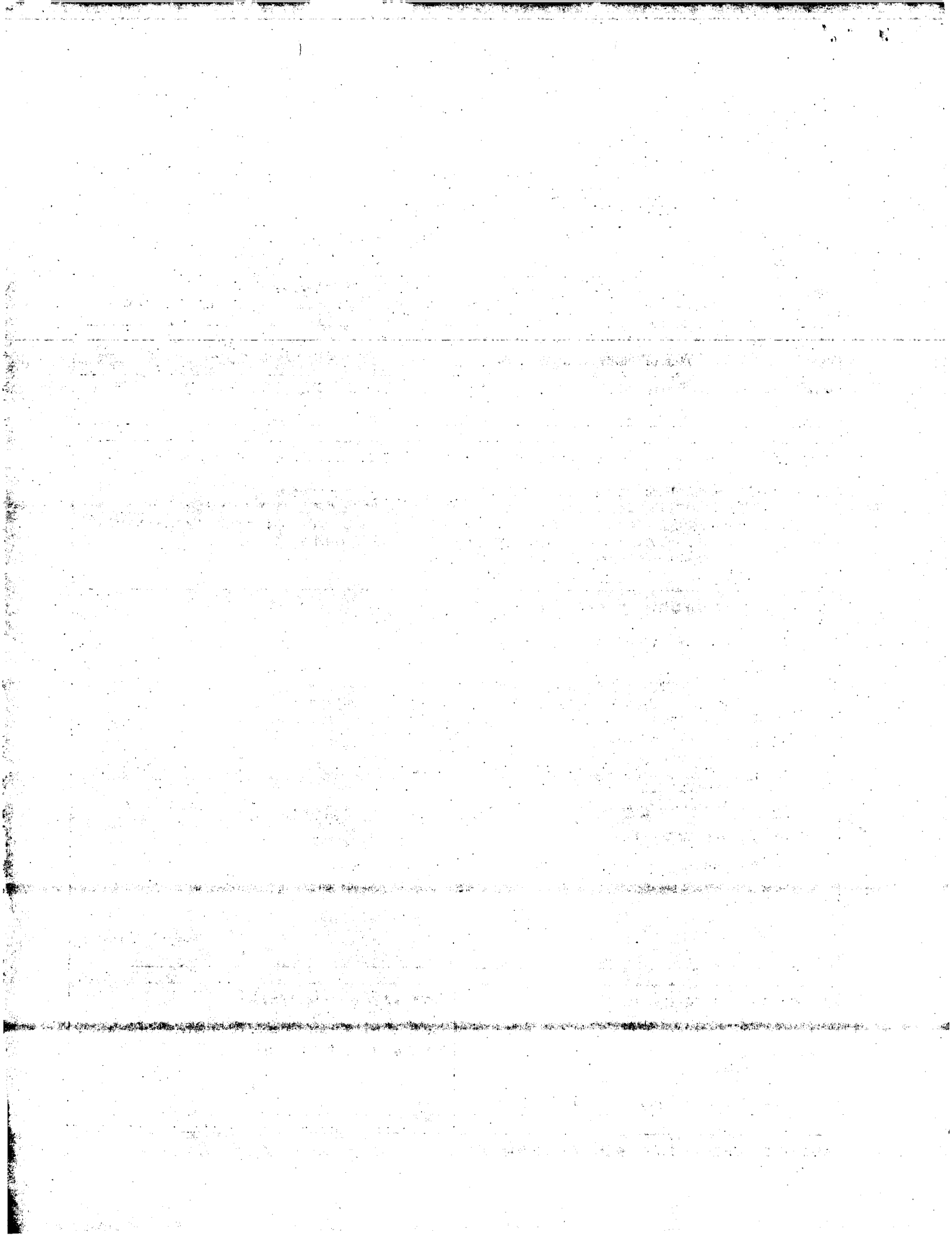


出願人又は代理人 の書類記号 FTY0008-PCT	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知(様式PCT/ IPEA/416)を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JPO0/04007	国際出願日 (日.月.年) 20.06.00	優先日 (日.月.年) 21.06.99
国際特許分類(IPC) Int. Cl <sup>7</sup> H01M4/58, 10/40, 10/54		
出願人(氏名又は名称) 株式会社 東芝		

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条(PCT36条)の規定に従い送付する。	
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 3 ページからなる。  <input checked="" type="checkbox"/> この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。 (PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照) この附属書類は、全部で 9 ページである。	
3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。	
I	<input checked="" type="checkbox"/> 国際予備審査報告の基礎
II	<input type="checkbox"/> 優先権
III	<input type="checkbox"/> 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成
IV	<input type="checkbox"/> 発明の単一性の欠如
V	<input checked="" type="checkbox"/> PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
VI	<input type="checkbox"/> ある種の引用文献
VII	<input type="checkbox"/> 国際出願の不備
VIII	<input type="checkbox"/> 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 18.12.00	国際予備審査報告を作成した日 28.06.01	
名称及びあて先 日本国特許庁(IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官(権限のある職員) 高木 正博 電話番号 03-3581-1101 内線 3477	4X 9541

様式PCT/IPEA/409(表紙)(1998年7月)



## I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に  
 応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。  
 PCT規則70.16, 70.17)

☐ 出願時の国際出願書類

- ☒ 明細書 第 1-5, 7, 8, 11-49 ページ、 出願時に提出されたもの  
 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 明細書 第 6, 9, 10 ページ、 28.05.01 付の書簡と共に提出されたもの
- ☒ 請求の範囲 第 1, 2, 5-8, 11-19, 22, 24-26, 29 項、 出願時に提出されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 PCT19条の規定に基づき補正されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 請求の範囲 第 3, 4, 9, 20, 23, 27, 30-34 項、 28.05.01 付の書簡と共に提出されたもの
- ☒ 図面 第 1-14 ページ/図、 出願時に提出されたもの  
 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 出願時に提出されたもの  
 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である \_\_\_\_\_ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語  
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語  
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表  
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった  
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

- ☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ  
☒ 請求の範囲 第 10, 21, 28 項  
☐ 図面 図面の第 \_\_\_\_\_ ページ/図

5. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならない、本報告に添付する。)





V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性(N)	請求の範囲	1-9, 11-20, 22-27, 29-34	有
	請求の範囲		無
進歩性(IS)	請求の範囲	1-9, 11-20, 22-27, 29-34	有
	請求の範囲		無
産業上の利用可能性(IA)	請求の範囲	1-9, 11-20, 22-27, 29-34	有
	請求の範囲		無

2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

請求の範囲1-9, 11-20, 22-27, 29-34に記載された発明は進歩性を有する。  
 平均粒径の対して粒径が600%以上の粗大粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ平均密度に対して密度が150%以上の高密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であること、及び、平均粒径に対して粒径が15%以下の微小粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ平均密度に対して密度が50%以下の低密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であることは、国際調査報告で引用されたいずれの文献にも記載されておらず、当業者にとって自明の事項でもない。  
 また、平均粒径に対して250%以上の粗大粒子と平均密度に対して密度が120%以上の高密度粒子が同時に取り除かれるように分離除去すること、及び、平均粒径に対して粒径が50%以下の微小粒子と平均密度に対して密度が75%以下の低密度粒子が同時に取り除かれるように分離除去することは、国際調査報告で引用されたいずれの文献にも記載されておらず、当業者にとって自明の事項でもない。



# PATENT COOPERATION TREATY

## PCT

### INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference FTY0008-PCT	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/JP00/04007	International filing date 20. June 2000 (20.06.00)	Priority date 21 June 1999 (21.06.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC Int. Cl <sup>7</sup> H01M4/58, 10/40, 10/54		
Applicant  KABUSHIKI KAISHA TOSHIBA		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examination Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.

2. This REPORT consists of a total of   3   sheets, including this cover sheet.

☒ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority. (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

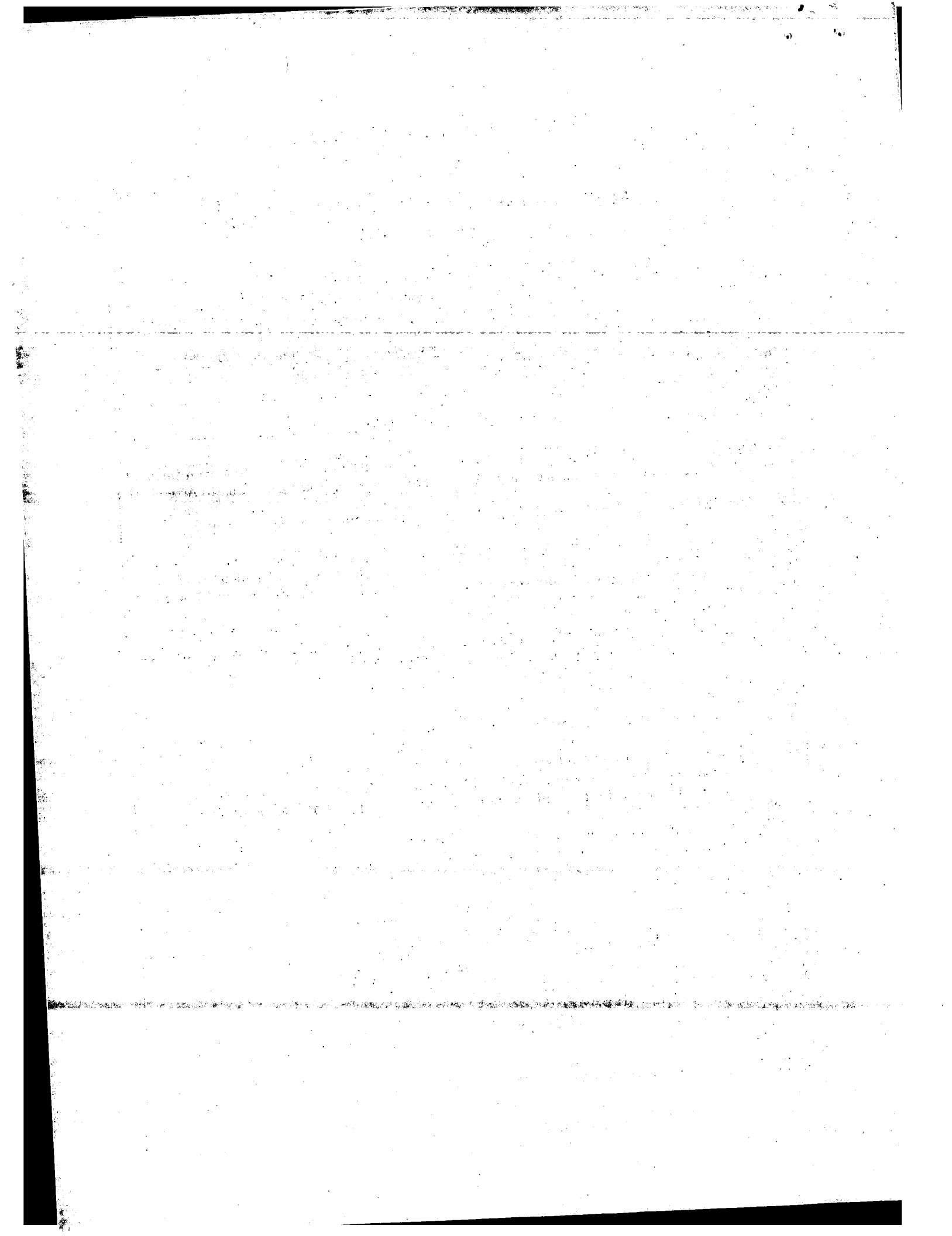
These annexes consist of a total of   9   sheets.

3. This report contains indications relating to the following item.

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step or industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☐ Certain defects in the international application
- VIII ☐ Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 18 December 2000 (18.12.00)	Date of completion of this report 28 June 2001 (28.06.01)
Name and mailing address of the IPEA/JP Japanese Patent Office (IPEA/JP) 4-3, Kasumigaseki 3-chome, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 JAPAN	Authorized officer  Masahiro TAKAGI (sealed) 4X 9541 Telephone No. 03-3581-1101 (3477)

Form PCT/IPEA/409 (cover sheet) (July 1998)



## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.  
PCT/JP00/04007

## I. Basis of the report

1. This report has been drawn on the basis of (Substantive sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments):

☐ the international application as originally filed.

☒ the description, pages 1-5, 7, 8, 11-49, as originally filed.

pages \_\_\_\_\_, filed with the demand.

pages 6, 9, 10, filed with the letter of

28.05.2001

☒ the claims, claims 1, 2, 5-8, 11-19, 22, 24-26, 29, as originally filed.

claims \_\_\_\_\_, as amended

(together with any statement under Article 19).

claims \_\_\_\_\_, filed with the demand.

claims 3, 4, 9, 20, 23, 27, 30-34, filed with the letter of

28.05.2001

☒ the drawings, pages 1-4, as originally filed.

pages \_\_\_\_\_, filed with the demand.

pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).

☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).

☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

☐ contained in the international application in written form.

☐ filed together with the international application in computer readable form.

☐ furnished subsequently to this Authority in written form.

☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.

☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.

☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. The amendments have resulted in the cancellation of:

☐ the description, pages \_\_\_\_\_.

☒ the claims, Nos. 10, 21, 28.

☐ the drawings, sheets/fig. \_\_\_\_\_.

5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box. (Rule 70.2c. Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report).



## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application-No.  
PCT/JP00/04007**V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement****1. STATEMENT**

Novelty(N)

Claims 1-9, 11-20, 22-27, 29-34 YES

Claims \_\_\_\_\_ NO

Inventive Step(IS)

Claims 1-9, 11-20, 22-27, 29-34 YES

Claims \_\_\_\_\_ NO

Industrial Applicability(IA)

Claims 1-9, 11-20, 22-27, 29-34 YES

Claims \_\_\_\_\_ NO

**2. References and Explanation**

Inventions set forth in Claims 1 through 9, 11 through 20, 22 through 27, and 29 through 34 have inventive steps.

It is not disclosed in any references cited in the International Search Reports that a content of coarser particles, of which particle sizes are 600% or more with respect to an average particle size, is 1% or less by volume, and a content of higher density particles, of which densities are 150% or more with respect to an average density, is 1000 ppm or less by mass, and a content of finer particles, of which particle sizes are 15% or less with respect to the average particle size, is 1% or less by weight, and a content of lower density particles, of which densities are 50% or less with respect to the average density, is 1000 ppm or less by mass. Accordingly, these are not obvious to those skilled in the art.

In addition, it is not disclosed in any references cited in the International Search Reports that coarser particles, of which particle sizes are 250% or more with respect to the average particle size and higher density particles, of which densities are 120% or more with respect to the average density, are simultaneously removed, and finer particles, of which particle sizes are 50% or less with respect to the average particle size and lower density particles, of which densities are 75% or less with respect to the average density, are simultaneously removed. Accordingly, these are not obvious to those skilled in the art.

[The text in this section is extremely faint and illegible due to the quality of the scan. It appears to be a multi-paragraph document with several lines of text per paragraph.]



## 特許協力条約

発信人 日本国特許庁（国際予備審査機関）

出願人代理人

須山 佐一

殿

あて名

〒 101-0046

東京都千代田区神田多町2丁目1番地  
神田東山ビル

RECEIVED

01.3.30

SAKURA

PCT見解書

(法第13条)  
〔PCT規則66〕発送日  
(日.月.年)

27.03.01

出願人又は代理人

書類記号

FTY0008-PCT

応答期間

上記発送日から 2 月以内

国際出願番号

PCT/JPO0/04007

国際出願日

(日.月.年) 20.06.00

優先日

(日.月.年) 21.06.99

国際特許分類 (IPC)

Int. Cl. H01M4/58, 10/40, 10/54

出願人 (氏名又は名称)

株式会社 東芝

1. これは、この国際予備審査機関が作成した 1 回目の見解書である。
2. この見解書は、次の内容を含む。
- I ☒ 見解の基礎
  - II ☐ 優先権
  - III ☐ 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解の不作成
  - IV ☐ 発明の単一性の欠如
  - V ☒ 法第13条 (PCT規則66.2(a)(ii)) に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
  - VI ☐ ある種の引用文献
  - VII ☐ 国際出願の不備
  - VIII ☐ 国際出願に対する意見
3. 出願人は、この見解書に応答することが求められる。
- いつ? 上記応答期間を参照すること。この応答期間に間に合わないときは、出願人は、法第13条 (PCT規則66.2(d)) に規定するとおり、その期間の経過前に国際予備審査機関に期間延長を請求することができる。ただし、期間延長が認められるのは合理的な理由があり、かつスケジュールに余裕がある場合にに限られることに注意されたい。
- どのように? 法第13条 (PCT規則66.3) の規定に従い、答弁書及び必要な場合には、補正書を提出する。補正書の様式及び言語については、法施行規則第62条 (PCT規則66.8及び66.9) を参照すること。
- なお 補正書を提出する追加の機会については、法施行規則第61条の2 (PCT規則66.4) を参照すること。補正書及び/又は答弁書の審査官による考慮については、PCT規則66.4の2を参照すること。審査官との非公式の連絡については、PCT規則66.6を参照すること。
- 応答がないときは、国際予備審査報告は、この見解書に基づき作成される。
4. 国際予備審査報告作成の最終期限は、PCT規則69.2の規定により 21.10.01 である。

名称及びあて先

日本国特許庁 (IPEA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

高木 正博

4 X

9541

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

見解書



## I. 見解の基礎

1. この見解書は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT 14条)の規定に基づく命令に応答するために提出された差替え用紙は、この見解書において「出願時」とする。)

☒ 出願時の国際出願書類

- ☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 出願時に提出されたもの  
 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 出願時に提出されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 PCT 19条の規定に基づき補正されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 出願時に提出されたもの  
 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 出願時に提出されたもの  
 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である \_\_\_\_\_ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語  
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語  
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき見解書を作成した。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表  
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった  
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

- ☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ  
☐ 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項  
☐ 図面 図面の第 \_\_\_\_\_ ページ/図

5. ☐ この見解書は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c))



## V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第13条(PCT規則66.2(a)(ii))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

## 1. 見解

新規性(N)	請求の範囲	1-29	有
	請求の範囲		無
進歩性(IS)	請求の範囲		有
	請求の範囲	1-29	無
産業上の利用可能性(IA)	請求の範囲	1-29	有
	請求の範囲		無

## 2. 文献及び説明

文献1・・・JP, 11-149925, A(富士フイルムセルテック株式会社), 2. 6月. 1999  
(02. 06. 99), 請求項1-8

文献2・・・JP, 11-135119, A(松下電器産業株式会社), 21. 5月. 1999(21. 05. 99), 請求項  
1-3, 6

文献3・・・JP, 8-22846, A(富士写真フイルム株式会社), 23. 1月. 1996(23. 01. 96), 請求  
項1

文献4・・・JP, 50-72884, A(株式会社日立製作所), 16. 6月. 1975(16. 06. 75), 特許請求  
の範囲

請求の範囲1-15に記載された発明は、国際調査報告で引用された文献1、2  
により進歩性を有しない。

文献1、2には、粗大粒子と高密度粒子の含有比率が小さいことについては記  
載されていないが、本願発明と同様に分級処理を行っているから、粗大粒子と高密  
度粒子の含有比率は本願発明と同レベルにまで低下していると認められる。

請求の範囲16-29に記載された発明は、国際調査報告で引用された文献1-  
4により進歩性を有しない。

文献3に記載されているように、粉体状の活物質材料を再生して用いることは公  
知の事項であるから、文献1、2記載の活物質材料における原料として、再生活物  
質材料を用いることは当業者にとって容易である。

また、文献4に記載されているように、粉体状の蛍光体材料を再生して用いるこ  
とも公知の事項である。



## 提出書類の様式及び作成要領について

答弁書及び手続補正書は、特許協力条約に基づく国際出願等に関する法律施行規則第62条（様式第23）及び同規則第3-1条（様式1-5）に従って作成して下さい。

【備考】

- 1 用紙は、日本工業規格A列4番（横21cm、縦29.7cm）の大きさとし、可塑性のある、丈夫な、白色の、滑らかな、光沢のない、耐水性のあるものを製紙して、折らずに片面のみを用い、用紙には、不要な文字、記号、枠線、けい線等を記載してはならない。
- 2 用紙には、しわ及び裂け目があるてはならない。
- 3 余白は、少なくとも用紙の上面、右端及び下端におのおの2cm並びに左端に2.5cmをとるものとし、原則としてその上端及び左端についてはおのおの4cm並びにその右端及び下端についてはおのおの3cmを越えないものとする。この場合において、余白は、完全な空白とし、おとくこととする。ただし、上端の余白の左隅であつた1.5cm以内に番題記号・番題に記載されている場合に限り、）を付すことができる。
- 4 各番号は、タイプ印刷又は印刷体を用いるものとし、静電的方法、写真オフセット及び複写機による複製に直接利用される部数複製することができるように作成する。
- 5 各番号のすべつに用紙には、アラビア数字により1から始まる連続符号を用紙（余白部分を除く。）の左上端又は下端の中央に付する。
- 6 タイプ印刷による場合において、行の間隔は、少なくとも5mm以上をとる。ただし、備考1.1.、1.4においてローマ字を用いるときは、1.5文字の幅をとる。
- 7 記載事項は、4号文字の大きさの文字（備考1.1.、1.4においてローマ字を用いるときは、大文字の文字）を縦0.21cm以上の文字）により、かつ、明色の退色性のない色であつて備考4に定める要件を満たすものに記載する。
- 8 「国際図章の表示」の欄には、既に特許庁から国際図章符号の通知を受けた場合には、その番号を「PCT/」「POO/」「OOO/」のように記載し、国際図章符号の通知を受けた前の場合には、その国際図章の提出日と日付する順に「OO/」「OO/」の図章に「年（年については西暦紀元の下2桁）のように表示するとともに、番題記号（図章に記載されている場合に限り、）を合せて記載する。
- 9 氏名は、日本人にあつては姓及び名を姓、名の順に記載し、また、法人にあつてはその名称を記載する。
- 10 「あて名」は、「日本国・何国・何部・何村、大文字・字何、何番地、何号」のように詳しく記載するとともに、郵便番号を記載する。
- 11 氏名若しくは名号又はあて名には、これらの音訳又は英語への翻訳をローマ字を用いて併記する。
- 12 「国籍」は、出人又は代表者がその氏民である国の国名を記載する。
- 13 「住所」は、出人又は代表者がその居住者である国の国名を記載する。
- 14 国名を記載する場合においては、特許庁長官が指定する国の名称を本語及び英語により表示する。
- 15 「代理人」の欄には、その氏名の記載に合わせて、その氏名の前に「弁護士」「代理人」又は「庶民代表人」のうち該当するものを記載する。
- 16 代理人によるときは本人の印は不要とし、代理人にうけいなくは「代理人」の欄を設けるには及ばない。
- 17 各用紙においては、原則として抹消、訂正、重書き及び行間挿入を行つてはならない。
- 18 各番号の用紙は、容易に分離し、又はとじ直すことができるように例は3クリップ等を用いてとじる。
- 19 「あて名」は出人国、代表者、代理人又は復代理人各一人ごとに1つあて名のみを記載する。
- 20 「復代理人」の欄には、その氏名の記載に合わせて、その氏名の前に「弁護士」又は「弁護士」のうち該当するものを記載する。
- 21 復代理人によるときは代理人の印は不要とし、復代理人による場合には「復代理人」の欄を設けるには及ばない。
- 22 付は「西暦紀元及びグレゴリー暦により、日についての数字、月についての数字及び年についての数字及び日付の数字をその順序に従つてそれぞれに2桁のワラビ数字で表示し、かつ、日及び月の数字の後にバックスラッシュ（例えば1978年3月30日は「30.03.78」）。他の紀元又は暦を用いる場合には、西暦紀元及びグレゴリー暦による日付を併記する。

- 5 請求の範囲について補正をするときは、当該補正に係る請求の範囲を次のように記載した差替用紙に添付する。
- イ 新たな請求の範囲を追加するときは、その追加する請求の範囲に補正前の請求の範囲の最後のものに付した番号を「O（追加）」のように記載する。
- ロ いずれかの請求の範囲を削除するときは、その削除する請求の範囲に付されている番号を「X（削除）」のように記載する。
- ハ 請求の範囲の数を増減せずに補正するときは、その補正された請求の範囲に補正前の請求の範囲の番号と次の番号を「O（補正番号）」のように記載する。
- 6 第50条の3第3号の規定によりフレキシブルディスクを提出するとき又は第50条の3第5項の規定による命令に基づきフレキシブルディスクを提出するときは、次の要領で記載する。
- イ 「7 添付書類の目録」の欄に次のように記載する。
- 5 添付書類の目録 1 配列表に関するコードデータを記録したフレキシブルディスク 1枚
- 2 陳述書 1通
- 3 フレキシブルディスクの記録形式等の情報を記載した書面 1通
- ロ 「陳述書」は、原則として次の文例により作成する。「国産出願の表示」の項目は、備考15に従って記載する。
- (文例)

## 陳述書

特許庁長官

本書に添付したフレキシブルディスクに記録した塩基配列又はアミノ酸配列は、明細書に記録した塩基配列又はアミノ酸配列を忠実にコード化したものであって、内容を変更したものでないことを陳述します。

平成 年 月 日

国際出願の表示

発明の名称

(印)

- 特許出願書類に記入した特許出願書類の記載形式等の情報は記載した書面)は、原則として、「出願人氏名(「フィジカル」の欄に記載する氏名)」「代理人氏名(名称)」「国際出願の表示」「発明の名称」「使用した文字コード」、「代理を記録したファイル名」及び「連絡先(電話番号及び担当者の氏名)」の項目を設けて記載することにより作成する。
- ニ「5 補正の対象」及び「6 補正の内容」の欄は設けない。
- 第50条の3第5項の規定による命令に基づき配列表を記載した書面を提出するときは、「7 振付番附の目録」の欄に次のように記載し、「5 補正の対象」及び「6 補正の内容」の欄は設けない。
- 5 振付番附の目録 1 配列表を記載した書面
- 1 通 用紙は、日本工業規格A列4号(横21cm、2.97cm)の大きさとし、可撓性のある丈夫な、白い色の、滑らかな、光沢のない、耐水性のあるものを紙原とし、折らずに片面のみを用い、用紙には、不要な文字、記号、枠線、引線等を記載してはならない。
- 9 用紙には、しわ及び折目及びあつてはならない。
- 10 余白は、少なくとも用紙の左端、右端及び左端についてはおのおの2cm並びに左端に2.5cmをとるものとし、原則としてその上端及び左端についてはおのおの4cm並びにその右端及び下端についてはおのおの3cmを越えないものとする。この場合において、余白は、完全な空白としておくこととする。ただし、上端の余白の左端であつて上端から1.5cm以内に書類番号(願書に記載されている場合に限る。)を付すことができる。
- 11 手続補正書は、タイプ印又は印刷によるものとし、写真、静電的方法、写真オフセット及びマイクロフィルムによるもので直接に行われる部数の複製をすることができるように作成する。
- 12 手続補正書のすべての用紙には、アラビア数字により1から始まる連番番号を用いる(余白部分を除く。)の上端又は下端の中央に付する。
- 13 タイプ印書による場合において、行の間隔は、少なくとも5mm以上をとる。ただし、備考1、6、19においてローマ字を用いるときは、1.5文字の幅をとる。
- 14 記載事項は、4号活字の大きさの文字(備考16、19においてローマ字を用いるときは、大文字の大きさが縦0.21cm以上の文字)により、かつ、暗色の退色しない色であつて書き、大きく定める要件を満たすものとする。
- 15 「国際出願」の欄には、既に特許庁から国際出願番号の通知を受けている場合には、その番号を「PCT/N」/「P/OO/OO/OO」のように記載し、国際出願番号の通知を受ける場合の組合には、その国際出願の提出日が月年日の順に「OO.OO.OO」提出の国際出願(年)については西暦記号の下2桁)のように記載するとともに、書類番号(願書に記載されている場合に限る。)を合せて記載する。
- 16 「氏名(名称)」は、自然にあっては姓及び名を姓、名の順に記載し、また、法人にあつてはその名称を記載する。
- 17 「あて名」は、日本国、何国、何郡、何村、大字何、字何、何番地、何号)のように詳しく記載するとともに、郵便番号を記載する。
- 18 氏名若しくは名称又はあて名には、これらの音訳又は英語への翻訳をローマ字を用いて併記する。
- 19 「国籍」は、出願人又は代表者がその氏名である国の国名を記載する。
- 20 「住所」は、出願人又は代表者がその居住者である国の国名を記載する。
- 21 国名を記載する場合においては、特許庁長官が所定する国の名称を日本語及び英語により表示する。
- 22 「代理人」の欄には、その氏名の記載に合せて、その氏名の前に「弁護士」又は「弁理士」又は「法定代理人」のうち該当するものを記載する。
- 23 代理人によるときは本人の印は不要とし、代理人によらないときは「代理人」の欄を設けるには及ばない。
- 24 各用紙においては、原則として抹消、訂正、重ね書き及び行間挿入を行つてはならない。
- 25 手続補正書の用紙は、容易に分離し、又はとじ直すことができるように例えばバクリップ等を用いて補正する。
- 26 「あて名」は出願人、代表者、代理人又は復代理人各人ごとに1つであて名のみを記載する。
- 27 「復代理人」の欄には、その氏名の記載に合せて、その氏名の前に「弁護士」又は「弁理士」のうち該当するものを記載する。
- 28 復代理人によるときは本人の印は不要とし、復代理人によらないときは「復代理人」の欄を設けるには及ばない。
- 29 「日付」は、西暦及びグレゴリー暦により、日についての数字、月についての数字及び年についての数字から2桁の数字とすの順序に従つてそれぞれについて2桁のアラビア数字で表示し、かつ、日及び月の数字の前にゼロを付す(例えば1978年3月30日は「130.0.3.78」)。他の紀元又は暦を用いる場合には、西暦紀元及びグレゴリー暦による日付を併記する。

様式第23 (第62条関係)

答 并 審

特許庁審査官 殿

- 1 国際出願の表示
- 2 出願人（代表者  
氏名（名称  
あて名  
国籍  
住所
- 3 代理人  
氏名  
あて名
- 4 通知の日付
- 5 答弁の内容
- 6 添付書類の目録

(備考)

- 1 法第6条の規定による命令に基づき補正をするときは表題を「手続補正書（法第6条の規定による命令に基づき補正）」とし、法第11条の規定による補正をするときは「手続補正書（法第11条の規定による補正）」とし、令第1条第2項の規定による命令に基づき補正をするときは「手続補正書（令第1条第2項の規定による命令に基づき補正）」とし、第27条第3項第1項の規定による補正をするときは「手続補正書（第27条第3項の規定による補正）」とし、第28条第3項第1項の規定による補正をするときは「手続補正書（第28条第3項の規定による補正）」とし、第50条の第3第3項の規定によるフレキシブルディスクの提出をするときは、「第50条の第3第3項の規定によるフレキシブルディスクの提出書」とし、第50条の第3第5項の規定による命令に基づきフレキシブルディスクの提出をするときは、「第50条の第3第5項の規定による命令に基づきフレキシブルディスクの提出書」とし、第50条の第3第5項の規定による命令に基づき複製表を記載した書面を提出するときは、「第50条の第3第5項の規定による命令に基づき複製表を記載した書面の提出書」とし、第50条の第3第8項の規定による命令に基づき補正をするときは、「手続補正書（第50条の第3第8項の規定による命令に基づき補正）」とし、
- 2 規定は、裁判官及び書記官並びに事務官の職務の機会を付与した場合にあっては当該許認可官である、その職務に充てられた者は特許官と見なすこととする。
- 3 「補正の対象」の欄には、「願書のⅡ、出願人の欄」のように補正をする 記名と補正をする箇所を記載する。
- 4 「補正の内容」の欄には、「別紙のとおり」と記載するとともに補正事項を指摘し、補正のための登録用紙を別紙として添付する。ただし、補正の結果、用紙の全体が削除されることとなる場合、法第6条、令第1条第2項、第2条第2条第1項若しくは第50条の第3第8項の規定による命令に基づき手続の補正の旨又は第27条の第3第1項の規定による手続の補正の場合にあっては、その手続の補正事項について記載した用紙を提出し、交換が容易にできるようにして、その交換に必要となる補正の旨と交換の用紙を添付する場合において、補正の補正事項が、一部の箇所の削除又は軽微な訂正若しくは追加である場合には、用紙の明りょうさ及び直接複製に影響を及ぼさないことを条件として、先に提出した補正書の写しに補正することにより、登録用紙とすることができ。

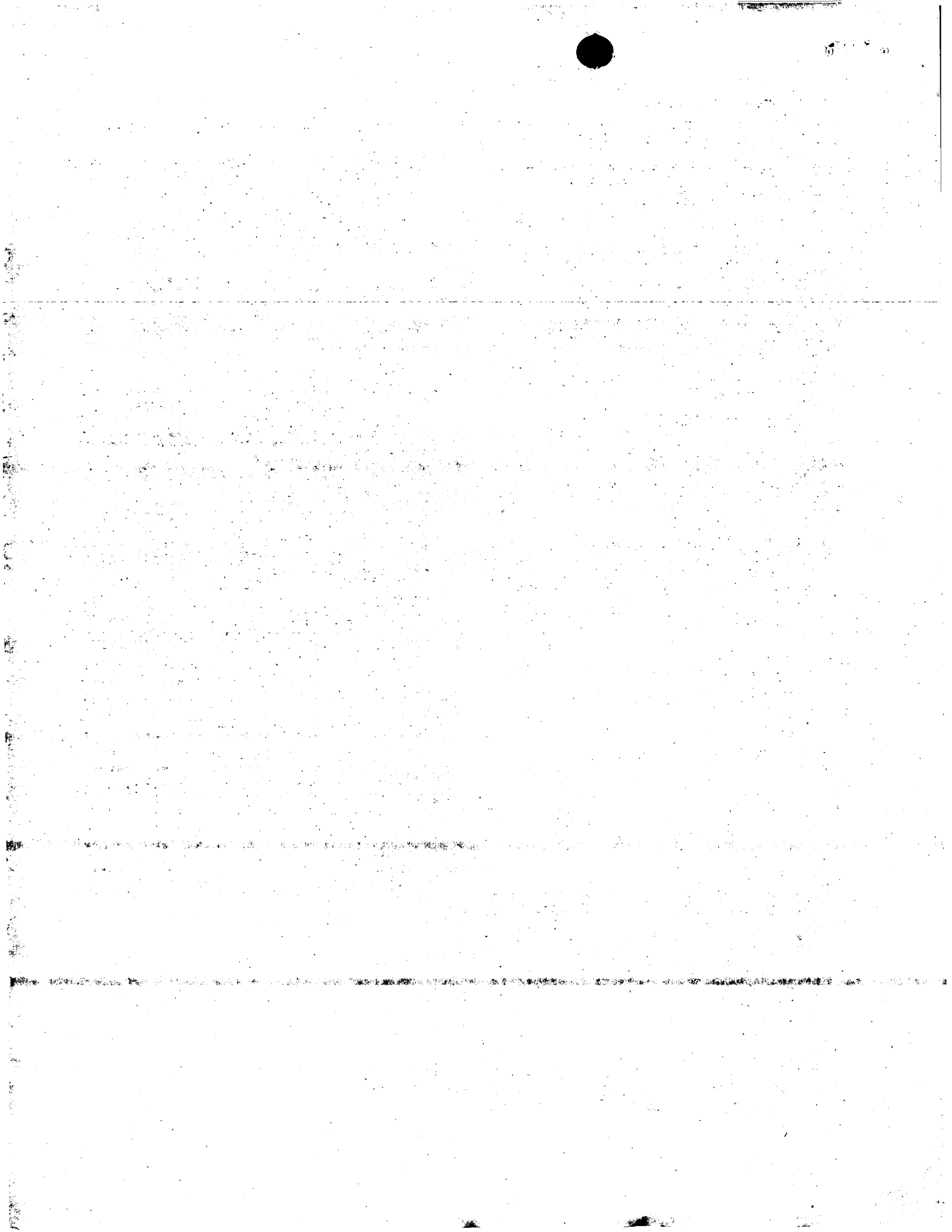
様式第15 (第31条関係)

手 校 補 正 書

**特許庁長官**

(特許庁審査官)

- 1 国籍出願の表示
- 2 出願人（代表者）  
氏名（名称）  
あて名  
国籍  
住所
- 3 代理人  
氏名  
あて名
- 4 補正命令の日付
- 5 補正の対象
- 6 補正の内容
- 7 添付書類の目録





答 弁 書

特許庁審査官

殿



1. 国際出願の表示 PCT/JPO0/04007

2. 出 願 人

名 称 株式会社 東芝

KABUSHIKI KAISHA TOSHIBA

あて名 〒212-0013

日本国神奈川県川崎市幸区堀川町72番地

72, Horikawa-cho, Saiwai-ku,

Kawasaki-shi, Kanagawa 212-0013 JAPAN

国 籍 日本国 Japan

住 所 日本国 Japan

名 称 株式会社 エイ・ティーバッテリー

A&T BATTERY CORP.

あて名 〒140-0002

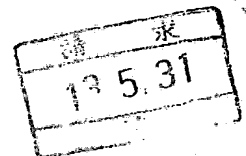
日本国東京都品川区東品川四丁目10番27号

10-27, Higashishinagawa 4-chome,

Shinagawa-ku, Tokyo 140-0002 JAPAN

国 籍 日本国 Japan

住 所 日本国 Japan





3. 代理人

氏名 (7784) 弁理士 須山 佐一

SUYAMA Saichi



あて名 〒101-0046

日本国東京都千代田区神田多町2丁目1番地

神田東山ビル 電話 03(3254)1039

Kandahigashiyama BLDG.,

1, Kandatacho 2-chome, Chiyoda-ku,

Tokyo 101-0046 JAPAN

4. 通知の日付 27.03.01 (発送日)

5. 答弁の内容

(1) 審査官殿には、本願の請求の範囲1～15に記載された発明は文献1 (JP,11-149925,A) および文献2 (JP,11-135119,A) により進歩性を有せず、請求の範囲16～29に記載された発明は文献1、文献2、文献3 (JP,8-22846,A) および文献4 (JP,50-72884,A) により進歩性を有しないという見解を示されました。

しかしながら、本願出願人は本日法第11条の規定による手続補正書を提出し、本願の請求の範囲9, 20, 27を補正すると共に、請求の範囲10, 21, 28を削除し、本願発明と各文献との差異を明確に致しましたので、請求の範囲1～9, 11～15および補正により追加した請求の範囲30～34に記載された発明は文献1, 2に対して進歩性を有し、また請求の範囲16～20, 22～27, 29に記載された発明は文献1～4に対して進歩性を有するものと思料します。

-----

(2) 本願の請求の範囲 1 記載の発明 (第 1 の発明) は、

「1. 非水電解液二次電池に用いられる金属酸化物からなる正極活物質であって、前記金属酸化物の平均粒径に対して粒径が 600% 以上の粗大粒子の含有比率が体積比で 1% 以下であり、かつ前記金属酸化物の平均密度に対して密度が 150% 以上の高密度粒子の含有比率が質量比で 1000ppm 以下である二次電池用正極活物質」  
であります。

ここで、本願の第 1 の発明が対象とする「粗大粒子および高密度粒子」とは、例えば請求の範囲 2 に記載したように、

「前記粗大粒子は前記正極活物質の凝集体、前記正極活物質と他材料との結合体および不純物粒子から選ばれる少なくとも 1 種の粒子であり、かつ前記高密度粒子は粒子状の金属性不純物」

であります。

本願の請求の範囲 7 記載の発明は、上記した正極活物質中の粗大粒子および高密度粒子を具体的な数値で規定したものであって、

「粒径が  $30\mu\text{m}$  以上の粗大粒子の含有比率が体積比で 1% 以下であり、かつ密度が  $7\text{g}/\text{cm}^3$  以上の高密度粒子の含有比率が質量比で 1000ppm 以下である」

ことを特徴とするものであります。

なお、請求の範囲 3～6 は請求の範囲 1 に従属するものであり、請求の範囲 8 は請求の範囲 7 に従属するものであります。これらはいずれも請求の範囲 1 記載の発明もしくは請求の範囲 7 記載の発明の実施形態や好ましい構成などを規定したものであります。

また、本願の請求の範囲 14, 15 記載の発明 (第 3 の発明) は、上述した本願の請求の範囲 1, 7 記載の二次電池用正極活物質を用いた非水電解液二次電池であります。

2 124 1000

本願の第1の発明は、金属酸化物からなる正極活物質を用いて非水電解液二次電池を作製する際に、正極活物質中に含まれる粗大粒子のような粒径が異なる粒子だけでなく、粒子状の金属性不純物のような密度の異なる粒子、特に高密度粒子が電池性能や製造歩留りを低下させる原因となっていることを見出すと共に、不良原因となる高密度粒子を粗大粒子と同時に除去する技術を確立したことに基づいて成されたものであります。

すなわち、粒子状の金属性不純物は、本願明細書の第7頁や第14～15頁に記載したように、「二次電池を初期充電した際にイオンとなって溶出し、この溶出した金属が負極側で還元されて負極上に析出して堆積し、この金属の堆積が進むとセパレータを貫通して正極と接触することになるため、マイクロショートを引き起こす」という問題を生じさせるものであります。一方、粗大粒子は正極製造時の工程不良の原因となったり、また場合によってはマイクロショートなどの原因となるものであります。

このようなことから、本願の第1の発明においては、「金属酸化物の平均粒径に対して粒径が600%以上の粗大粒子（または粒径が $30\mu\text{m}$ 以上の粗大粒子）の含有比率を体積比で1%以下」としたことに加えて、上述したマイクロショートなどを生じさせて電池性能の低下原因となる「金属酸化物の平均密度に対して密度が150%以上の高密度粒子（または密度が $7\text{g/cm}^3$ 以上の高密度粒子）」の含有比率を「質量比で1000ppm以下」と規定しており、このような構成に基づいて非水電解液二次電池の「電池性能および製造歩留りの向上」を図ることを可能にしたものであります。

ここで、一般的な粉体の分級方法の1つとして用いられている篩分けは粒径のみに基づくものであり、本願発明のように粒子状の金属性不





純物のような高密度粒子を同時に除去することはできません。そこで、本願発明では「遠心力などの物理力に対して、粒子の抵抗力がその粒径や密度により異なることを利用して、粉体状正極活物質から粗大粒子と高密度粒子を同時に取り除く工程」を適用すると共に、このような分離除去工程の具体的な条件設定を行うことによって、上述した本願の請求の範囲 1，7 記載の二次電池用正極活物質を得ております。

すなわち、補正後の請求の範囲 9 記載の発明（第 2 の発明）は、請求の範囲 1，7 記載の二次電池用正極活物質を得る方法であって、

「9. 二次電池用正極活物質の原料粉末を所望の比率で混合し、この混合物を焼成して粉体状の正極活物質を製造するにあたり、

前記粉体状正極活物質を構成する粒子の粒径または密度に基づく抵抗力の差を利用して、前記粉体状正極活物質の平均粒径に対して粒径が 250% 以上の粗大粒子、および前記粉体状正極活物質の平均密度に対して密度が 120% 以上の高密度粒子が同時に取り除かれるように、前記粉体状正極活物質から粗大粒子と高密度粒子を同時に分離除去する工程を実施することを特徴とする二次電池用正極活物質の製造方法。」

であります。

本願の第 2 の発明は、追加した請求の範囲 30 に記載したように、例えば「分級ロータを有する遠心力式分級装置（ターボクラシファイアなどの強制渦による遠心力と流体抵抗力の釣り合いを利用した分級装置）」などを使用すると共に、その際の「分級ロータの回転数と空気流量を調整」し、「粗大粒子の除去については平均粒径に対して 250% 以上、高密度粒子については平均密度に対して 120% 以上」の各粒子を同時に取り除くように分級条件を設定することによって、「平均粒径に対して粒径が 600% 以上の粗大粒子の含有比率が体積比で 1% 以下で



あり、かつ金属酸化物の平均密度に対して密度が 150% 以上の高密度粒子の含有比率が質量比で 1000ppm 以下の二次電池用正極活物質」を得ることを可能にしております。

上述したように、本願発明は二次電池用正極活物質中に含まれる異物として、「粗大粒子」に加えて「高密度粒子」に着目すると共に、これらの粗大粒子と高密度粒子を同時に除去することを意図し、さらに粗大粒子と高密度粒子の同時除去に「粒子の粒径や密度に基づく抵抗力の差を利用すると共に、その際の具体的な条件設定を行う」ことによって、非水電解液二次電池の「電池性能および製造歩留りの向上」を図った二次電池用正極活物質、さらにはそれを用いた非水電解液二次電池を提供することを可能にしたものであります。

(3) このような本願の請求の範囲 1～8 記載の二次電池用正極活物質、請求の範囲 9，11～13，30 記載の二次電池用正極活物質の製造方法、および請求の範囲 14，15，31，32 記載の非水電解液二次電池に対して、まず文献 1 には「金属酸化物の塊状物を粉碎、分級した後、熱処理する電極材料の製造方法」、「平均粒子サイズが規定された電極材料」、さらに「分級方法として、篩、風力分級機などを用いることができる」ことが記載されております。

しかしながら、文献 1 に開示された分級は、篩分けも含む従来レベルの分級であって、あくまでも「金属酸化物の塊状物を粉碎した粉碎物から微粉などを除去して粒径の揃った活物質を得る上での分級」、すなわち“粒径のみに基づく分級”にすぎず、本願発明のように「高密度粒子を粗大粒子と同時に除去する」ことは何等意図されておられません。このことは、文献 1 の【発明の実施の形態】には「風力分級機などを用いることができる」と記載されているものの、【実施例】には「篩い分けす



ることにより粒径が  $4\sim 5\mu\text{m}$  の複合酸化物粒子を作製した」ことしか記載されていないことから明らかであります。

このように、文献 1 は本願発明の特徴部分である「粗大粒子と高密度粒子と同時に除去する」という技術を何等開示も示唆もしていないため、そのような文献 1 からは本願発明の二次電池用正極活物質、二次電池用正極活物質の製造方法、および非水電解液二次電池は何等想起し得ないものであります。

さらに、本願発明の二次電池用正極活物質は、粉体状正極活物質を単に分級しただけのものではなく、上述したように「粗大粒子の粒径については平均粒径に対して 250% 以上、高密度粒子については平均密度に対して 120% 以上の各粒子を同時に取り除くように分級条件を設定する（請求の範囲 9）」ことにより得られるものであります。

文献 1 はあくまでも「粒径制御に一般的な分級機の使用が可能である」ことを一文で例示しているだけであって、その際の分級条件については何等記載されていないことが明らかであります。ましてや、粗大粒子に加えて高密度粒子についても具体的な条件を設定することに関しては何等記載されていないだけでなく、そのような技術を文献 1 から想起することすらできないものであります。従って、文献 1 の活物質材料は粗大粒子と高密度粒子の含有比率が本願発明と同レベルまで低下しているとは到底認められないものであり、また実際に文献 1 の実施例では篩い分けしか行っておらず、高密度粒子の除去を実施していないため、本願発明に比べて「粒子状の金属性不純物のような高密度粒子」の含有比率が高いものであります。

なお、文献 1 の図 1 には、サイクロン分離機を有する熱処理装置が記載されているものの、ここでは搬送気流により加熱ゾーンに運んで、文献 1 の特徴である熱処理を行った後に、サイクロン分離機で“気体（搬

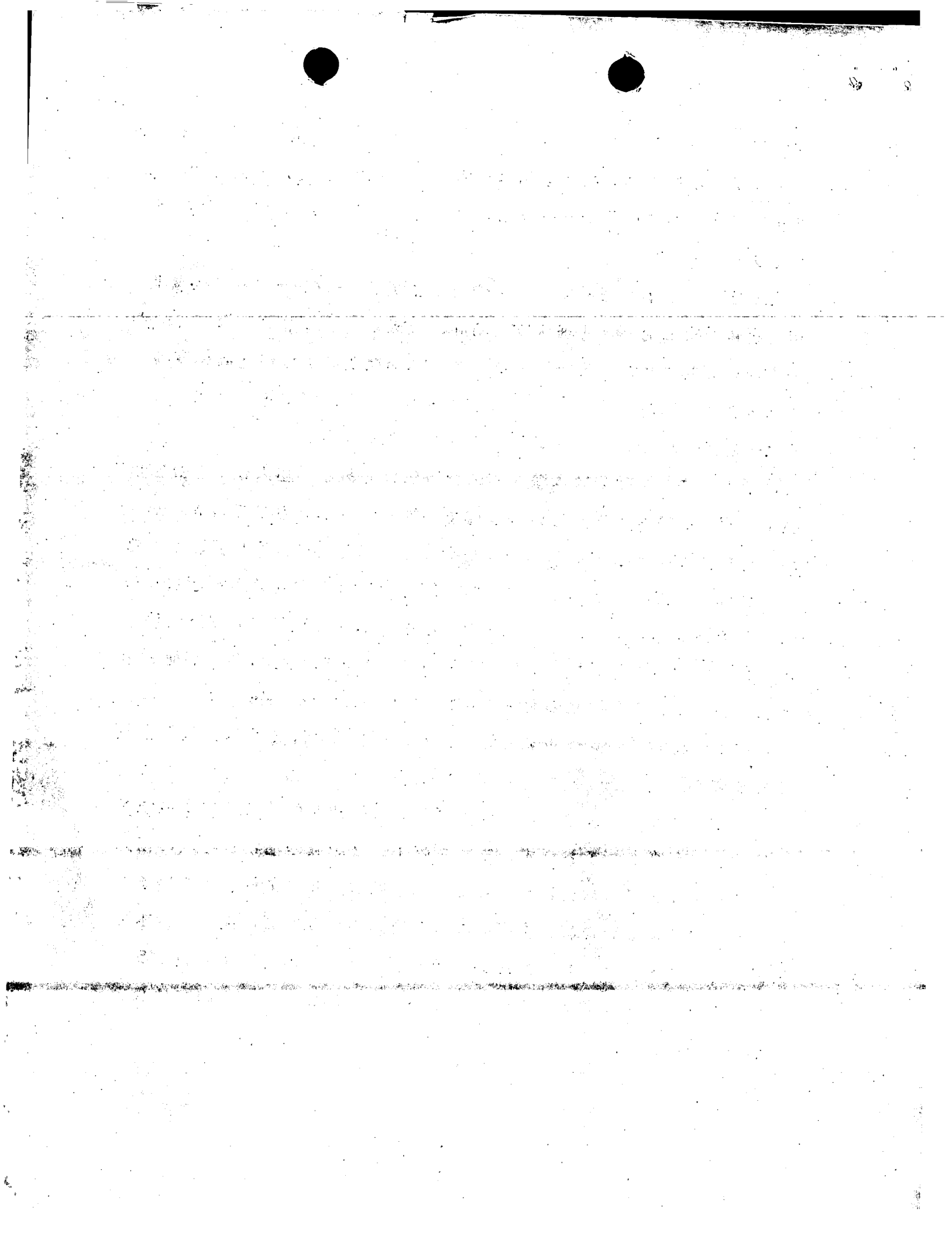


送気流)”と“粒子”を分離しているにすぎず、本願発明における“粒子”と“粒子”の分級操作は何等示唆しておらず、ましてや粗大粒子と高密度粒子を同時に分離除去することは一切示されていないことが明らかであります。

文献2は文献1と同様に、「平均粒子径が $10\sim 16\mu\text{m}$ 」の二次電池用活物質を得る上で、「塊状物を粉碎、分級した」ことが一例として明細書中に記載されているだけであって、本願発明のように「高密度粒子を粗大粒子と同時に除去する」ことは何等意図されておらず、また具体的な分級条件についても何等記載されておられません。

このように、文献2は本願発明の特徴部分である「粗大粒子と高密度粒子と同時に除去する」という技術を何等開示も示唆もしていないため、そのような文献2からは本願発明の二次電池用正極活物質、二次電池用正極活物質の製造方法、および非水電解液二次電池は何等想起し得ないものであります。さらに、「粗大粒子と高密度粒子の同時除去技術」を何等開示も示唆もしていないと共に、具体的な分級条件が何等示されていない文献2記載の活物質材料は、粗大粒子と高密度粒子の含有比率が本願発明と同レベルまで低下しているとは到底認められないものであります。

上述したように、文献1，2は本願発明の特徴的な技術並びに構成を何等開示も示唆もしておらず、また文献1，2記載の活物質材料の粗大粒子と高密度粒子の含有比率が本願発明と同レベルまで低下しているとは到底認められないため、本願の請求の範囲1～8記載の発明、請求の範囲9，11～13，30記載の発明、および請求の範囲14，15，31～34記載の発明は、文献1，2から容易に成し得たものではないと思料します。

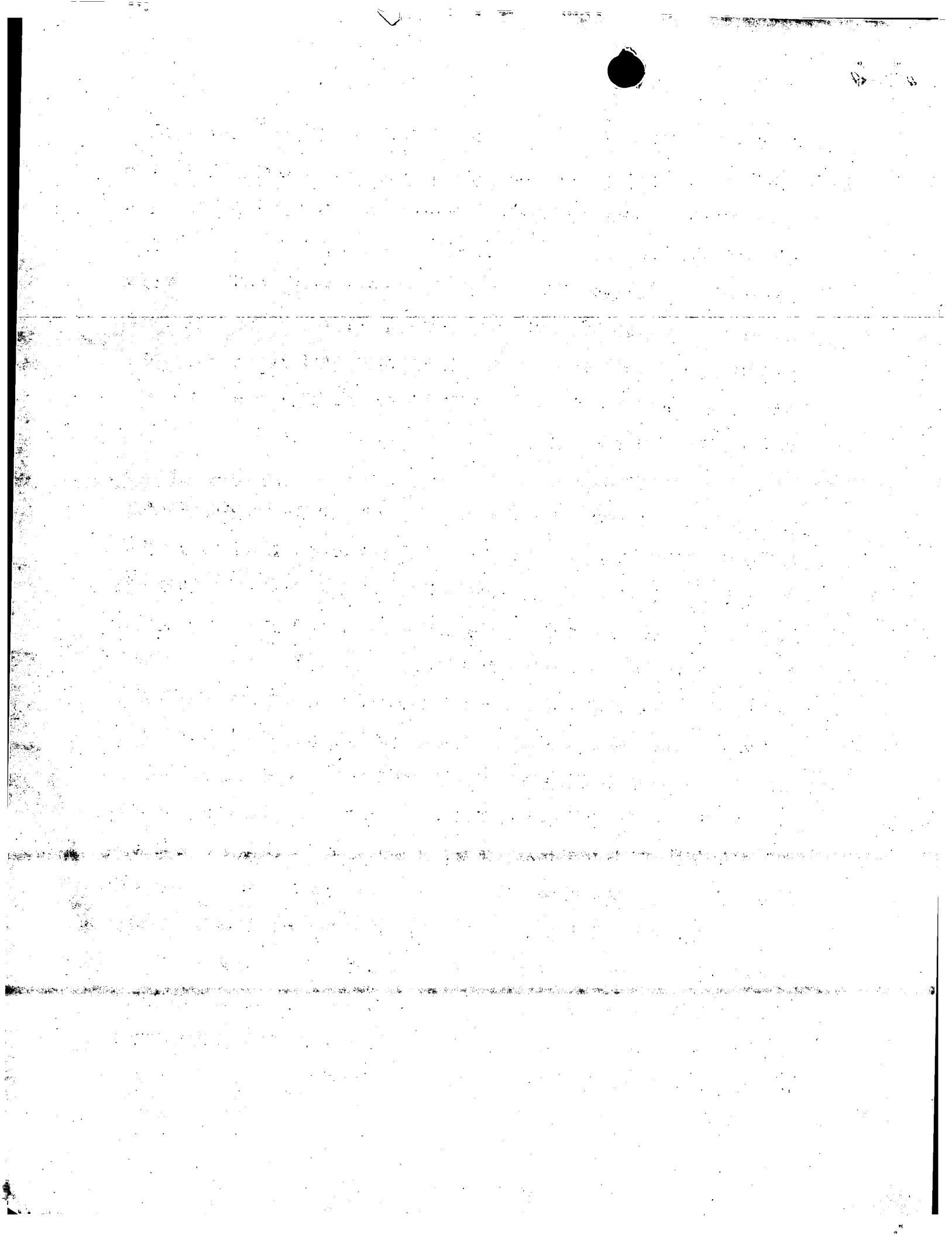




(4) 本願の請求の範囲 16～19 記載の発明、および請求の範囲 20, 22～27, 29 記載の発明は、上述した本願発明の特徴部分である「粗大粒子と高密度粒子の同時除去技術」、さらには「微小粒子と低密度粒子の同時除去技術」を、例えば「二次電池の製造工程で生じた廃電極や廃二次電池から回収、再生した再生正極活物質」や「電子管の製造工程で生じた余剰の蛍光体スラリーや廃電子管から回収、再生した再生蛍光体」などの再生電子機能材料および再生工程に適用したものであって、基本的な構成は前述した本願発明の二次電池用正極活物質とその製造方法と同様であります。

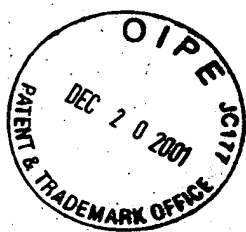
(5) 上述した本願の請求の範囲 16～19 記載の再生電子機能材料、および請求の範囲 20, 22～27, 29 記載の電子機能材料の再生方法に対して、文献 3 には正極活物質を回収し、これをガス中で加熱・燃焼させ、金属酸化物などとして活物質の原料に再利用することが記載されているだけであり、同様に文献 4 にはカラー受像管の製造工程で回収した処理液から蛍光体を回収することが記載されているにすぎません。

このように、文献 3, 4 は電子機能材料の再生工程で「粗大粒子と高密度粒子の同時除去工程（特定の分級処理工程）」を実施し、「粗大粒子と高密度粒子の含有比率を同時に低減した再生電子機能材料」を何等開示も示唆もしておりません。また、上述したように文献 1, 2 にも本願発明の特徴的な構成は何等開示されていないため、文献 3, 4 と文献 1, 2 とを組合せたとしても、本願発明の再生電子機能材料および電子機能材料の再生方法の特徴部分は何等想起し得ないものであります。従って、本願の請求の範囲 16～19 記載の発明、および請求の範囲 20, 22～27, 29 記載の発明は、文献 1～4 から容易に成し得たものではないと思料します。



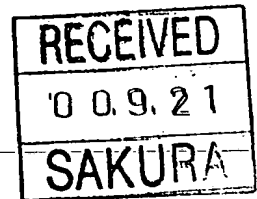
(6) 以上を要するに、本願の請求の範囲 1～9，11～13，34 記載の発明はいずれも文献 1，2 に対して進歩性を有し、かつ本願の請求の範囲 16～20，22～27，29 記載の発明はいずれも文献 1～4 に対して進歩性を有するものであると思料します。

以 上



特 許 協 力 条 約

発信人 日本国特許庁 (国際調査機関)



出願人代理人 須山 佐一
あて名 殿 〒 101-0046 東京都千代田区神田多町2丁目1番地 神田東山ビル

PCT  
国際調査報告又は国際調査報告を作成しない旨  
の決定の送付の通知書  
(法施行規則第41条)  
[PCT規則44.1]

発送日  
(日.月.年) 19.09.00

出願人又は代理人  
の書類記号 FTY0008-PCT

今後の手続きについては、下記1及び4を参照。

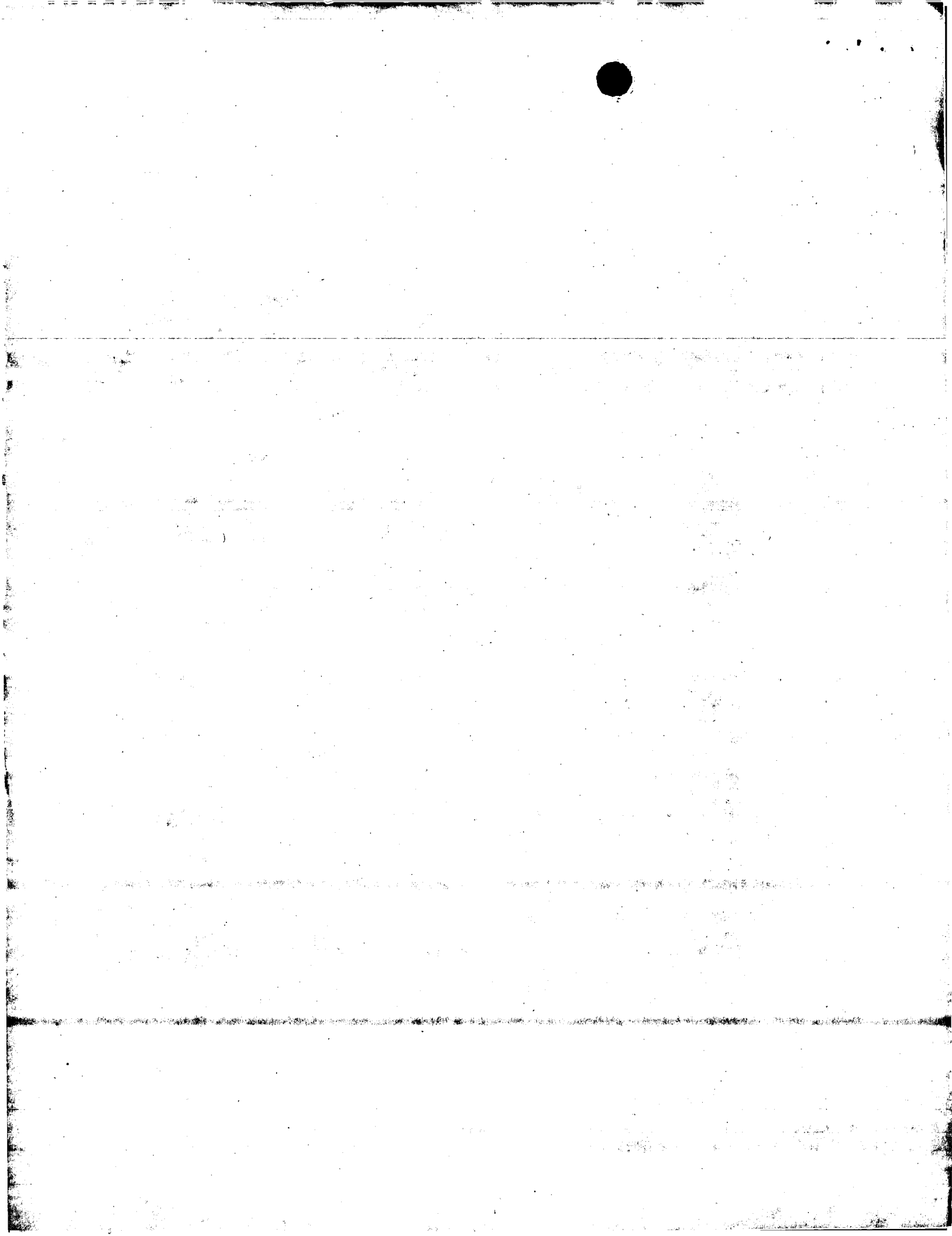
国際出願番号  
PCT/JPO0/04007

国際出願日  
(日.月.年) 20.06.00

出願人 (氏名又は名称)  
株式会社 東芝

- ☒ 国際調査報告が作成されたこと、及びこの送付書とともに送付することを、出願人に通知する。  
PCT19条の規定に基づく補正書及び説明書の提出  
出願人は、国際出願の請求の範囲を補正することができる (PCT規則46参照)。  
いつ 補正書の提出期間は、通常国際調査報告の送付の日から2月である。  
詳細については添付用紙の備考を参照すること。  
どこへ 直接次の場所へ  
The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland  
Facsimile No.: (41-22) 740.14.35  
詳細な手続については、添付用紙の備考を参照すること。
- ☐ 国際調査報告が作成されないこと、及び法第8条第2項 (PCT17条(2)(a)) の規定による国際調査報告を作成しない旨の決定をこの送付書とともに送付することを、出願人に通知する。
- ☐ 法施行規則第44条 (PCT規則40.2) に規定する追加手数料の納付に対する異議の申立てに関して、出願人に下記の点を通知する。  
☐ 異議の申立てと当該異議についての決定を、その異議の申し立てと当該異議についての決定の両方を指定官庁へ送付することを求める出願人の請求とともに、国際事務局へ送付した。  
☐ 当該異議についての決定は、まだ行われていない。決定されしだい出願人に通知する。
- 今後の手続： 出願人は次の点に注意すること。  
優先日から18月経過後、国際出願は国際事務局によりすみやかに国際公開される。出願人が公開の延期を望むときは、国際出願又は優先権の主張の取下げの通知がPCT規則90の2.1及び90の2.3にそれぞれ規定されているように、国際公開の事務的な準備が完了する前に国際事務局に到達しなければならない。  
出願人が優先日から30月まで (官庁によってはもっと遅く) 国内段階の開始を延期することを望むときは、優先日から19月以内に、国際予備審査の請求書が提出されなければならない。  
国際予備審査の請求書若しくは、後にする選択により優先日から19箇月以内に選択しなかった又は第二章に拘束されないため選択できなかったすべての指定官庁に対しては優先日から20月以内に、国内段階の開始のための所定手続を取らなければならない。

名称及びあて名 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	権限のある職員 特 許 庁 長 官 電話番号 03-3581-1101 内線 3477	4X 9541
---	---	---------



## 注 意

1. 国際調査報告の発送日から起算する条約第19条(1)及び規則46.1に従う国際事務局への補正期間に注意してください。
2. 条約22条(2)に規定する期間に注意してください。

### 3. 文献の写しの請求について

#### 国際調査報告に記載した文献の複写

特許庁にこれらの引用文献の写しを請求することもできますが、日本特許情報機構でもこれらの引用文献の複写物を販売しています。日本特許情報機構に引用文献の複写物を請求する場合は下記の点に注意してください。

#### 〔申込方法〕

- (1) 特許(実用新案・意匠)公報については、下記の点を明記してください。

○特許・実用新案及び意匠の種類

○出願公告又は出願公開の年次及び番号(又は特許番号、登録番号)

○必要部数

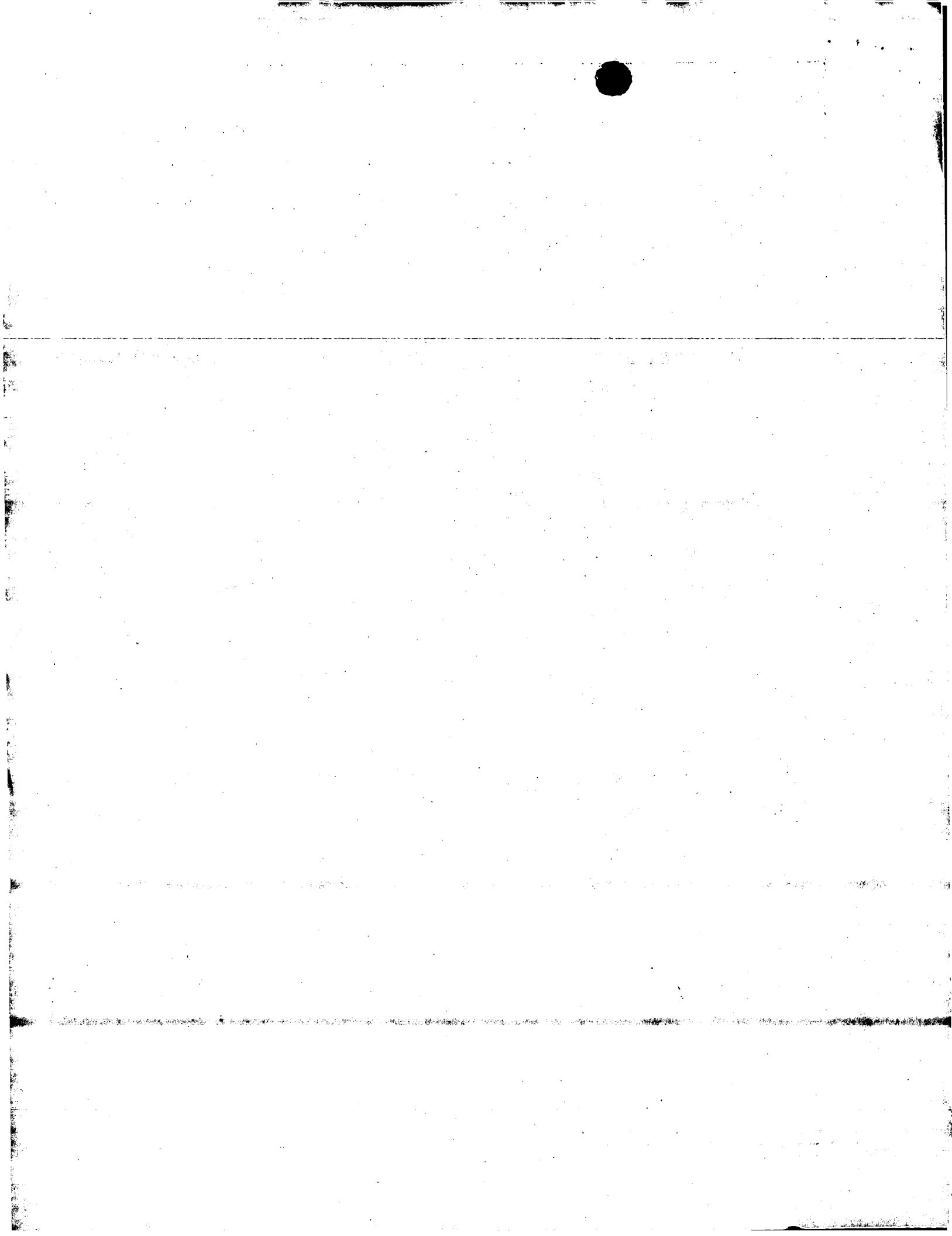
- (2) 公報以外の文献の場合は、下記の点に注意してください。

○国際調査報告の写しを添付してください(返却します)。

#### 〔申込み及び照会先〕

〒135 東京都江東区東陽4-1-7 佐藤ダイヤビル  
財団法人 日本特許情報機構 サービス課  
TEL 03-5690-3900

注意 特許庁に対して文献の写しの請求をすることができる期間は、国際出願日から7年です。





この備考は、PCT 19条の規定に基づく補正書の提出に関する基本的な指示を与えるためのものである。この備考は特許協力条約並びにこの条約に基づく規則及び実施細則の規定に基づいている。この備考とそれらの規定とが相違する場合には、後者が適用される。詳細な情報については、WIPOの出版物であるPCT出願人の手引も参照すること。

#### PCT 19条の規定に基づく補正書の提出に関する指示

出願人は、国際調査報告を受領した後、国際出願の請求の範囲を補正する機会が一回ある。しかし、国際出願のすべての部分（請求の範囲、明細書及び図面）が、国際予備審査の手続においても補正できるもので、例えば出願人が仮保護のために補正書を公開することを希望する場合又は国際公開前に請求の範囲を補正する別の理由がある場合を除き、通常PCT 19条の規定に基づく補正書を提出する必要はないことを強調しておく。さらに、仮保護は一部の国のみで与えられるだけであることも強調しておく。

#### 補正の対象となるもの

PCT 19条の規定により請求の範囲のみ補正することができる。

国際段階においてPCT 34条の規定に基づく国際予備審査の手続において請求の範囲を（更に）補正することができる。

明細書及び図面は、PCT 34条の規定に基づく国際予備審査の手続においてのみ補正することができる。

国内段階に移行する際、PCT 28条（又はPCT 41条）の規定により、国際出願のすべての部分を補正することができる。

#### いつ

国際調査報告の送付の日から2月又は優先日から16月の内どちらか遅く満了するほうの期間内。しかし、その期間の満了後であっても国際公開の技術的な準備の完了前に国際事務局が補正を受領した場合には、その補正書は、期間内に受理されたものとみなすことを強調しておく（PCT規則46.1）。

#### 補正書を提出すべきところ

補正書は、国際事務局のみに提出でき、受理官庁又は国際調査機関には提出してはいけない（PCT規則46.2）。

国際予備審査の請求書を提出した／する場合については、以下を参照すること。

#### どのように

1以上の請求の範囲の削除、1以上の新たな請求の範囲の追加、又は1以上の請求の範囲の記載の補正による。

差替え用紙は、補正の結果、出願当初の用紙と相違する請求の範囲の各用紙毎に提出する。

差替え用紙に記載されているすべての請求の範囲には、アラビア数字を付さなければならない。請求の範囲を削除する場合、その他の請求の範囲の番号を付け直す必要はない。請求の範囲の番号を付け直す場合には、連続番号で付け直さなければならない（PCT実施細則第205号(b)）。

補正は国際公開の言語で行う。

#### 補正書にどのような書類を添付しなければならないか

##### 書簡（PCT実施細則第205号(b)）

補正書には書簡を添付しなければならない。

書簡は国際出願及び補正された請求の範囲とともに公開されることはない。これを「PCT 19条(1)に規定する説明書」と混同してはならない（「PCT 19条(1)に規定する説明書」については、以下を参照）。

書簡は、英語又は仏語を選択しなければならない。ただし、国際出願の言語が英語の場合、書簡は英語で、仏語の場合、書簡は仏語で記載しなければならない。

書簡には、出願時の請求の範囲と補正された請求の範囲との相違について表示しなければならない。特に、国際出願に記載した各請求の範囲との関連で次の表示（2以上の請求の範囲についての同一の表示する場合は、まとめることができる。）をしなければならない。

- (i) この請求の範囲は変更しない。
- (ii) この請求の範囲は削除する。
- (iii) この請求の範囲は追加である。
- (iv) この請求の範囲は出願時の1以上の請求の範囲と差し替える。
- (v) この請求の範囲は出願時の請求の範囲の分割の結果である。



次に、添付する書簡中での、補正についての説明の例を示す。

1. [請求の範囲の一部の補正によって請求の範囲の項数が48から51になった場合] :  
“請求の範囲1-29、31、32、34、35、37-48項は、同じ番号のもとに補正された請求の範囲と置き換えられた。請求の範囲30、33及び36項は変更なし。新たに請求の範囲49-51項が追加された。”
2. [請求の範囲の全部の補正によって請求の範囲の項数が15から11になった場合] :  
“請求の範囲1-15項は、補正された請求の範囲1-11項に置き換えられた。”
3. [原請求の範囲の項数が14で、補正が一部の請求の範囲の削除と新たな請求の範囲の追加を含む場合] :  
“請求の範囲1-6及び14項は変更なし。請求の範囲7-13は削除。新たに請求の範囲15、16及び17項を追加。”又は  
“請求の範囲7-13は削除。新たに請求の範囲15、16及び17項を追加。その他の全ての請求の範囲は変更なし。”
4. [各種の補正がある場合] :  
“請求の範囲1-10項は変更なし。請求の範囲11-13、18及び19項は削除。請求の範囲14、15及び16項は補正された請求の範囲14項に置き換えられた。請求の範囲17項は補正された請求の範囲15、16及び17項に分割された。新たに請求の範囲20及び21項が追加された。”

“PCT19条(1)の規定に基づく説明書”(PCT規則46.4)

補正書には、補正並びにその補正が明細書及び図面に与える影響についての説明書を提出することができる(明細書及び図面はPCT19条(1)の規定に基づいては補正できない)。

説明書は、国際出願及び補正された請求の範囲とともに公開される。

説明書は、国際公開の言語で作成しなければならない。

説明書は、簡潔でなければならない、英語の場合又は英語に翻訳した場合に500語を越えてはならない。

説明書は、出願時の請求の範囲と補正された請求の範囲との相違を示す書簡と混同してはならない。説明書を、その書簡に代えることはできない。説明書は別紙で提出しなければならない、見出しを付すものとし、その見出しは“PCT19条(1)の規定に基づく説明書”の語句を用いることが望ましい。

説明書には、国際調査報告又は国際調査報告に列記された文献との関連性に関して、これらを誹謗する意見を記載してはならない。国際調査報告に列記された特定の請求の範囲に関連する文献についての言及は、当該請求の範囲の補正に関してのみ行うことができる。

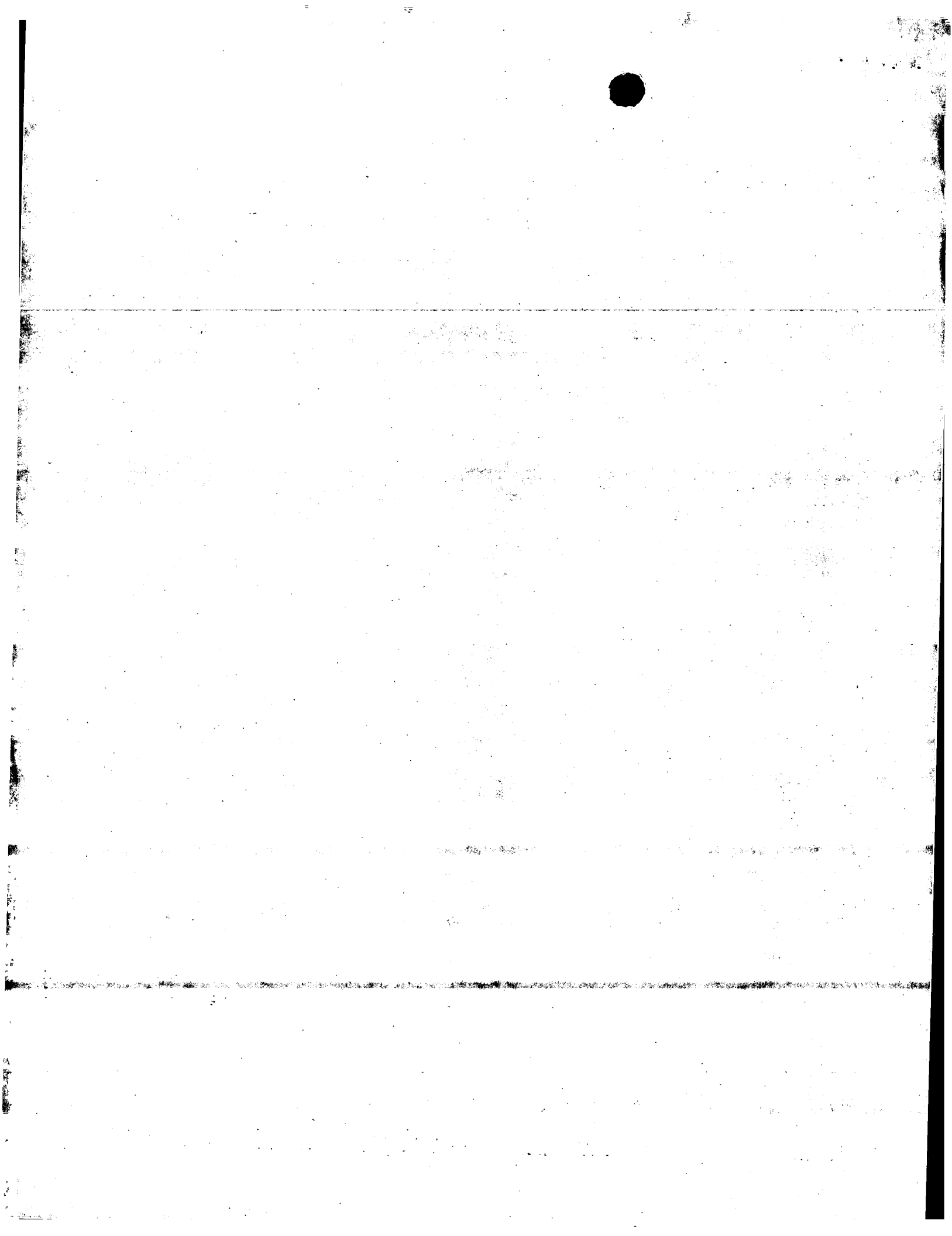
#### 国際予備審査の請求書が提出されている場合

PCT19条の規定に基づく補正書及び添付する説明書の提出の時に国際予備審査の請求書が既に提出されている場合には、出願人は、補正書(及び説明書)を国際事務局に提出すると同時にその写し及び必要な場合、その翻訳文を国際予備審査機関にも提出することが望ましい(PCT規則55.3(a)、62.2の第1文を参照)。詳細は国際予備審査請求書(PCT/IPEA/401)の注意書参照。

#### 国内段階に移行するための国際出願の翻訳に関して

国内段階に移行する際、PCT19条の規定に基づいて補正された請求の範囲の翻訳を出願時の請求の範囲の翻訳の代わりに又は追加して、指定官庁/選択官庁に提出しなければならないこともあるので、出願人は注意されたい。

指定官庁/選択官庁の詳細な要求については、PCT出願人の手引きの第II巻を参照。



P C

国際調査報告

(法 8 条、法施行規則第40、41条)  
〔PCT-18条、PCT規則43、44〕

出願人又は代理人 FTY0008 の書類記号 - PCT	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220)及び下記5を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP00/04007	国際出願日 (日.月.年) 20.06.00	優先日 (日.月.年) 21.06.99
出願人 (氏名又は名称) 株式会社 東芝		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条 (PCT 18 条) の規定に従い出願人に送付する。  
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 4 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。

☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願に含まれる書面による配列表

☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない (第 I 欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している (第 II 欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☐ 出願人が提出したものを承認する。

☒ 第 III 欄に示されているように、法施行規則第47条 (PCT 規則38.2(b)) の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から 1 カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、

第 4 図とする。 ☒ 出願人が示したとおりである。

☐ なし

☐ 出願人は図を示さなかった。

☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。



## 第Ⅲ欄 要約 (第1ページの5の続き)

本発明は、非水電解液二次電池に用いられる金属酸化物からなる正極活物質に関する。

金属酸化物の平均粒径に対して粒径が600%以上の粗大粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ金属酸化物の平均密度に対して密度が150%以上の高密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下にすることにより、電池性能や製造歩留まりを高めることができる。





A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))  
Int. Cl<sup>1</sup> H01M4/58, 10/40, 10/54

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))  
Int. Cl<sup>1</sup> H01M4/36-4/62, 10/36-10/40, 10/54

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年  
日本国公開実用新案公報 1971-2000年  
日本国実用新案登録公報 1996-2000年  
日本国登録実用新案公報 1994-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)  
J I C S T

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	JP, 11-149925, A(富士フイルムセルテック株式会社), 2. 6月. 1999 (02. 06. 99), 請求項 1 - 8 (ファミリーなし)	1-15 16-29
X Y	JP, 11-135119, A(松下電器産業株式会社), 21. 5月. 1999 (21. 05. 99), 請求項 1 - 3, 6 (ファミリーなし)	1-15 16-29
Y	JP, 8-22846, A(富士写真フイルム株式会社), 23. 1月. 1996 (23. 01. 96) , 請求項 1 (ファミリーなし)	16-29

☒ C欄の続きにも文献が列举されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

\* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献  
「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日  
12. 09. 00

国際調査報告の発送日

19.09.00

国際調査機関の名称及びあて先  
日本国特許庁 (ISA/JP)  
郵便番号 100-8915  
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)  
高木 正博

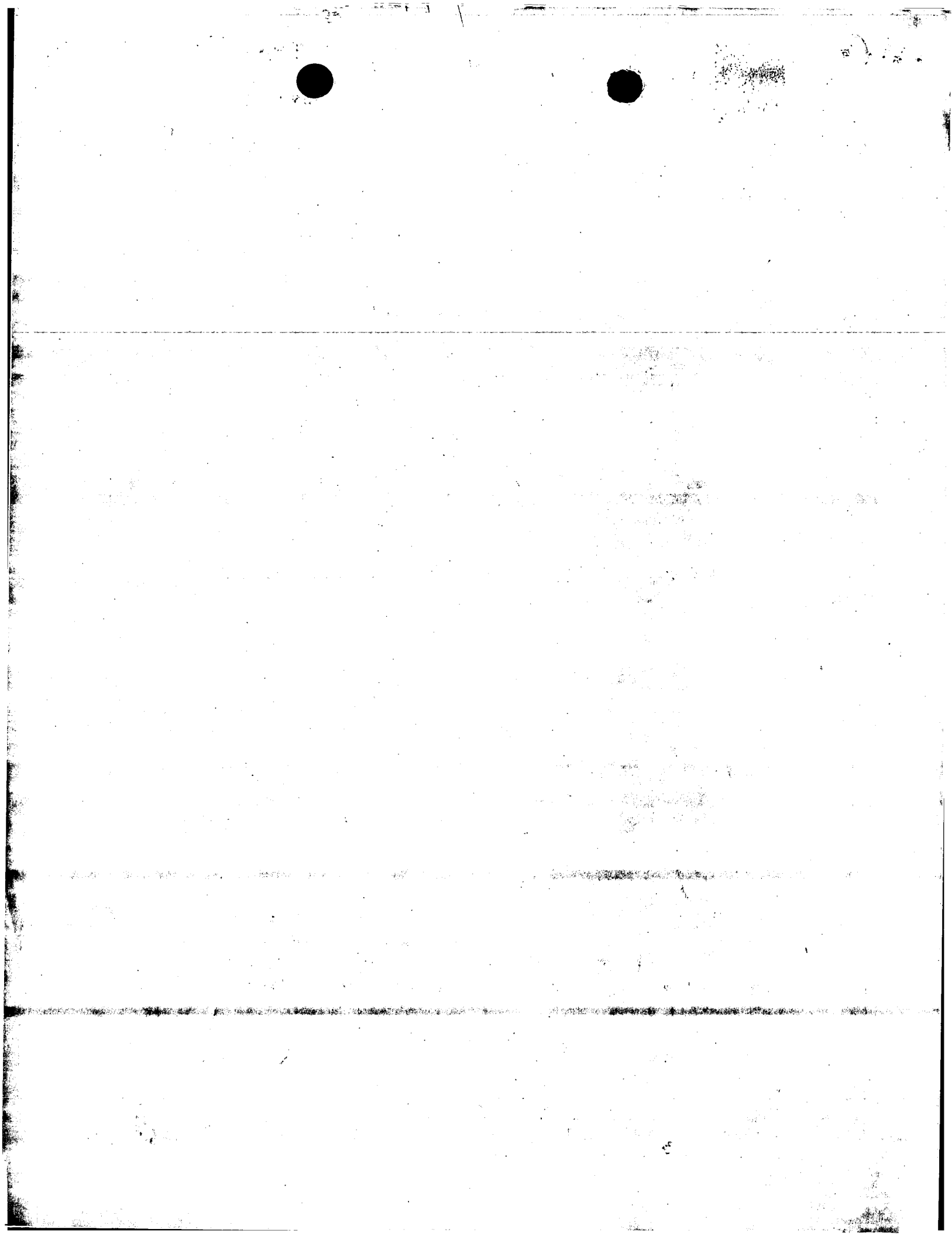


4 X 9541

電話番号 03-3581-1101 内線 3477



C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP, 50-72884, A (株式会社日立製作所), 16. 6月. 1975 (16. 06. 75), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	19, 26



特 許 協 力 条 約

PCT

国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)  
[PCT36条及びPCT規則70]

REC'D 13 JUL 2001

WIPO PCT

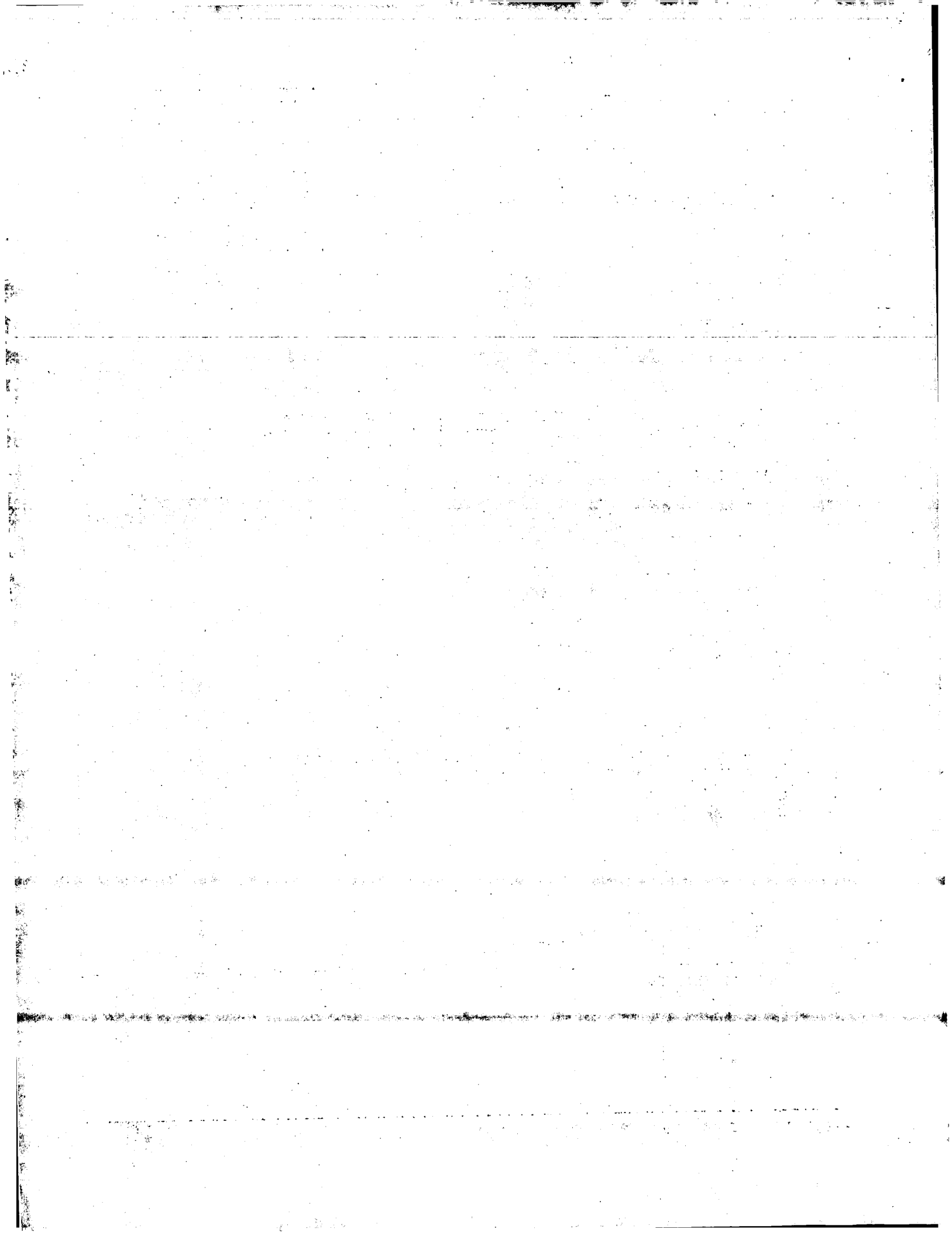
出願人又は代理人 の書類記号 FTY0008-PCT	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知（様式PCT/ IPEA/416）を参照すること。	
国際出願番号 PCT/J P 00/04007	国際出願日 (日.月.年) 20.06.00	優先日 (日.月.年) 21.06.99
国際特許分類 (IPC) Int. Cl <sup>7</sup> H01M4/58, 10/40, 10/54		
出願人 (氏名又は名称) 株式会社 東芝		

- 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条（PCT36条）の規定に従い送付する。
- この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 3 ページからなる。  
☒ この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び／又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び／又は図面も添付されている。  
(PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照)  
この附属書類は、全部で 9 ページである。

- この国際予備審査報告は、次の内容を含む。
  - ☒ 国際予備審査報告の基礎
  - ☐ 優先権
  - ☐ 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成
  - ☐ 発明の単一性の欠如
  - ☒ PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
  - ☐ ある種の引用文献
  - ☐ 国際出願の不備
  - ☐ 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 18.12.00	国際予備審査報告を作成した日 28.06.01	
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 高木 正博 電話番号 03-3581-1101 内線 3477	4 X 9541

様式PCT/IPEA/409 (表紙) (1998年7月)



## I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。PCT規則70.16, 70.17)

☐ 出願時の国際出願書類

☒ 明細書 第 1-5, 7, 8, 11-49 ページ、 出願時に提出されたもの  
 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 明細書 第 6, 9, 10 ページ、 28.05.01 付の書簡と共に提出されたもの

☒ 請求の範囲 第 1, 2, 5-8, 11-19, 22, 24-26, 29 項、 出願時に提出されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 PCT19条の規定に基づき補正されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 請求の範囲 第 3, 4, 9, 20, 23, 27, 30-34 項、 28.05.01 付の書簡と共に提出されたもの

☒ 図面 第 1-14 ページ/図、 出願時に提出されたもの  
 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

☐ 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 出願時に提出されたもの  
 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である \_\_\_\_\_ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語  
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語  
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表  
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった  
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ  
☒ 請求の範囲 第 10, 21, 28 項  
☐ 図面 図面の第 \_\_\_\_\_ ページ/図

5. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならず、本報告に添付する。)





## V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

## 1. 見解

新規性(N)

請求の範囲 1-9, 11-20, 22-27, 29-34

有

請求の範囲

無

進歩性(IS)

請求の範囲 1-9, 11-20, 22-27, 29-34

有

請求の範囲

無

産業上の利用可能性(IA)

請求の範囲 1-9, 11-20, 22-27, 29-34

有

請求の範囲

無

## 2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

請求の範囲1-9, 11-20, 22-27, 29-34に記載された発明は進歩性を有する。

平均粒径に対して粒径が600%以上の粗大粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ平均密度に対して密度が150%以上の高密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であること、及び、平均粒径に対して粒径が15%以下の微小粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ平均密度に対して密度が50%以下の低密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であることは、国際調査報告で引用されたいずれの文献にも記載されておらず、当業者にとって自明の事項でもない。

また、平均粒径に対して250%以上の粗大粒子と平均密度に対して密度が120%以上の高密度粒子が同時に取り除かれるように分離除去すること、及び、平均粒径に対して粒径が50%以下の微小粒子と平均密度に対して密度が75%以下の低密度粒子が同時に取り除かれるように分離除去することは、国際調査報告で引用されたいずれの文献にも記載されておらず、当業者にとって自明の事項でもない。



下の低密度粒子の含有比率が質量比で 1000ppm 以下であることを特徴としている。

本発明の二次電池用正極活物質の製造方法は、二次電池用正極活物質の原料粉末を所望の比率で混合し、この混合物を焼成して粉体状の正極活物質を製造するにあたり、前記粉体状正極活物質を構成する粒子の粒径または密度に基づく抵抗力の差を利用して、前記粉体状正極活物質の平均粒径に対して粒径が 250% 以上の粗大粒子、および前記粉体状正極活物質の平均密度に対して密度が 120% 以上の高密度粒子が同時に取り除かれるように、前記粉体状正極活物質から粗大粒子と高密度粒子を同時に分離除去する工程を実施することを特徴としている。分離除去工程は、例えば分級装置を用いて実施されるものである。

本発明の二次電池用正極活物質の製造方法は、さらに前記粉体状正極活物質の平均粒径に対して粒径が 50% 以下の微小粒子、および前記粉体状正極活物質の平均密度に対して密度が 75% 以下の低密度粒子を、前記粉体状正極活物質から同時に取り除くように、前記分離除去工程を実施することを特徴としている。

本発明の非水電解液二次電池は、Li 含有複合金属酸化物からなり、かつ前記複合金属酸化物の平均粒径に対して粒径が 600% 以上の粗大粒子の含有比率が体積比で 1% 以下であり、かつ前記複合金属酸化物の平均密度に対して密度が 150% 以上の高密度粒子の含有比率が質量比で 1000ppm 以下である正極活物質を含有する正極と、前記正極とセパレータを介して配置された負極と、前記正極、前記セパレータおよび前記負極を収納する電池容器と、前記電池容器内に充填された非水電解液とを具備することを特徴としている。



このような分離除去工程を適用したものである。

すなわち、本発明の再生電子機能材料は、電子部品の製造工程で生じた廃材または廃電子部品から回収、再生した粉体状の再生電子機能材料であって、前記粉体の平均粒径に対して粒径が600%以上の粗大粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ前記粉体の平均密度に対して密度が150%以上の高密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であることを特徴としている。

本発明の再生電子機能材料は、さらに前記粉体の平均粒径に対して粒径が15%以下の微小粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ前記粉体の平均密度に対して密度が50%以下の低密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であることを特徴としている。

本発明の他の再生電子機能材料は、電子部品の製造工程で生じた廃材または廃電子部品から回収、再生した粉体状の再生電子機能材料であって、前記粉体の平均粒径に対して粒径が15%以下の微小粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ前記粉体の平均密度に対して密度が50%以下の低密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であることを特徴としている。

本発明の電子機能材料の再生方法は、電子部品の製造工程で生じた廃材または廃電子部品から電子機能材料を回収する工程と、前記回収した電子機能材料を精製して、粉体状の電子機能材料を再生する工程とを有する電子機能材料の再生方法において、前記回収した電子機能材料を精製する過程で、前記粉体状電子機能材料を構成する粒子の粒径および密度に基づく抵抗力の差を利用して、前記粉体状電子機能材料の平均粒径に対して粒径が250%以上の粗大粒子、および前記粉体状電子機能材料の平均密度に対して密度が120%以上の高密度粒子が同時に取り除かれるように、前記粉体状電子機能材料から粗大粒子および高密度粒子



を同時に分離除去する工程を実施することを特徴としている。分離除去工程は、例えば分級装置を用いて実施されるものである。

本発明の電子機能材料の再生方法は、さらに前記粉体状電子機能材料の平均粒径に対して粒径が50%以下の微小粒子、および前記粉体状電子機能材料の平均密度に対して密度が75%以下の低密度粒子を、前記粉体状電子機能材料から同時に取り除くように、前記分離除去工程を実施することを特徴としている。

本発明の他の電子機能材料の再生方法は、電子部品の製造工程で生じた廃材または廃電子部品から電子機能材料を回収する工程と、前記回収した電子機能材料を精製して、粉体状の電子機能材料を再生する工程とを有する電子機能材料の再生方法において、前記回収した電子機能材料を精製する過程で、前記粉体状電子機能材料を構成する粒子の粒径または密度に基づく抵抗力の差を利用して、前記粉体状電子機能材料の平均粒径に対して粒径が50%以下の微小粒子、および前記粉体状電子機能材料の平均密度に対して密度が75%以下の低密度粒子が同時に取り除かれるように、前記粉体状電子機能材料から微小粒子および低密度粒子を同時に分離除去する工程を実施することを特徴としている。

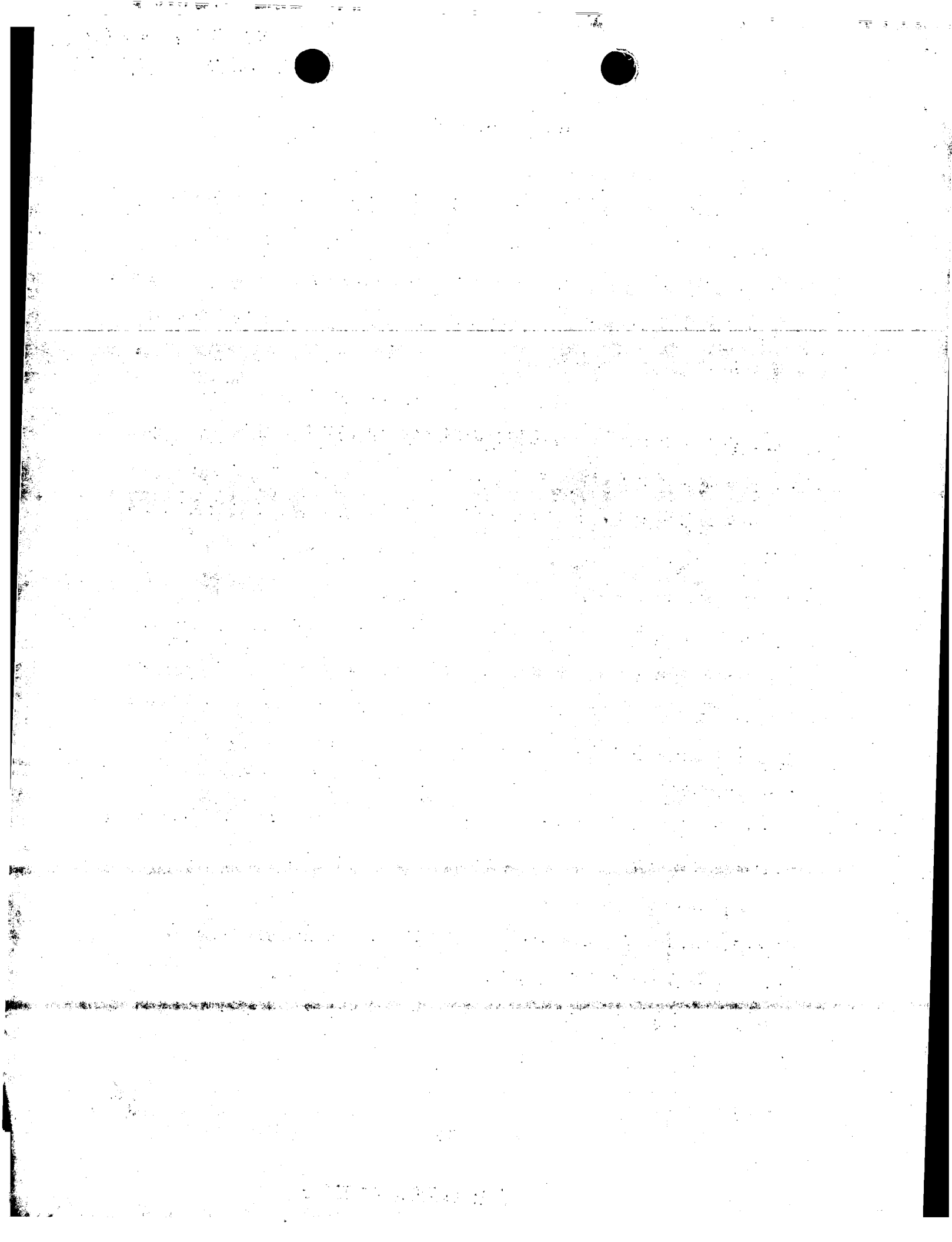
#### 図面の簡単な説明

図1は本発明の二次電池用正極活物質を適用した非水電解液二次電池の一構成例を示す断面図、

図2は乾式分級装置の分級点と粒子状金属性不純物の除去率との関係の一例を示す図、

図3は本発明の実施例1による二次電池用正極活物質の分級前の粒度分布を示す図、

図4は本発明の実施例1による二次電池用正極活物質の分級後の粒度





請 求 の 範 囲

1. 非水電解液二次電池に用いられる金属酸化物からなる正極活物質であって、前記金属酸化物の平均粒径に対して粒径が600%以上の粗大粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ前記金属酸化物の平均密度に対して密度が150%以上の高密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であることを特徴とする二次電池用正極活物質。

2. 請求項1記載の二次電池用正極活物質において、

前記粗大粒子は前記正極活物質の凝集体、前記正極活物質と他材料との結合体および不純物粒子から選ばれる少なくとも1種の粒子であり、かつ前記高密度粒子は粒子状の金属性不純物であることを特徴とする二次電池用正極活物質。

3. (補正後) 請求項1記載の二次電池用正極活物質において、

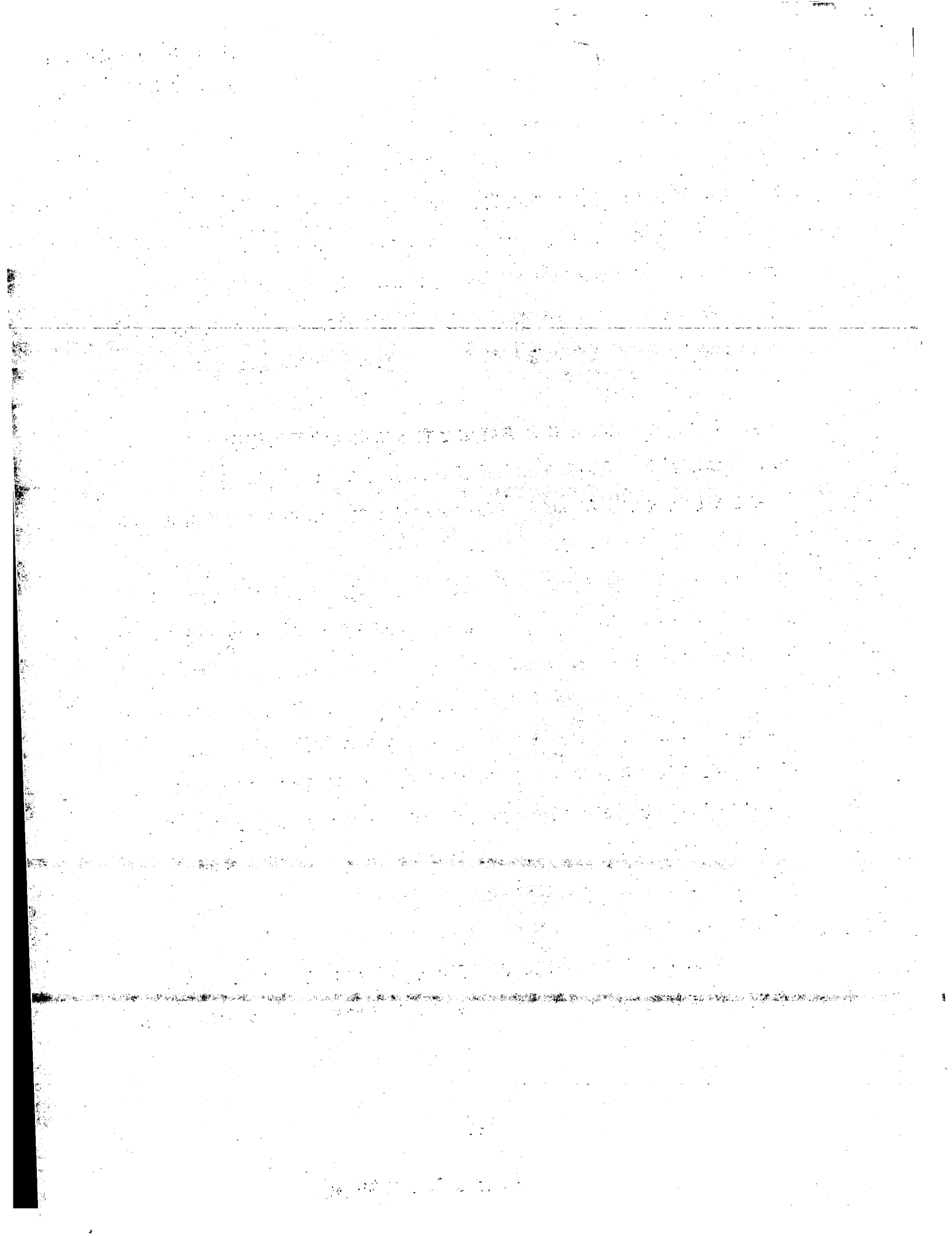
前記金属酸化物の平均粒径に対して粒径が400%以上の粗大粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ前記金属酸化物の平均密度に対して密度が150%以上の高密度粒子の含有比率が質量比で100ppm以下であることを特徴とする二次電池用正極活物質。

4. (補正後) 請求項1記載の二次電池用正極活物質において、

さらに、前記金属酸化物の平均粒径に対して粒径が15%以下の微小粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ前記金属酸化物の平均密度に対して密度が50%以下の低密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であることを特徴とする二次電池用正極活物質。

5. 請求項1記載の二次電池用正極活物質において、

前記正極活物質は、コバルト、ニッケルおよびマンガンから選ばれる少なくとも1種とリチウムとを含む複合金属酸化物からなることを特



徴とする二次電池用正極活物質。

6. 請求項5記載の二次電池用正極活物質において、

前記正極活物質中の不純物元素量は、鉄が200ppm以下、銅が50ppm以下、亜鉛が30ppm以下、ニッケルが400ppm以下、マンガンが40ppm以下であることを特徴とする二次電池用正極活物質。

7. 非水電解液二次電池に用いられる金属酸化物からなる正極活物質であって、粒径が $30\mu\text{m}$ 以上の粗大粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ密度が $7\text{g}/\text{cm}^3$ 以上の高密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であることを特徴とする二次電池用正極活物質。

8. 請求項7記載の二次電池用正極活物質において、

さらに、粒径が $0.5\mu\text{m}$ 以下の微小粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、密度が $2.5\text{g}/\text{cm}^3$ 以下の低密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であることを特徴とする二次電池用正極活物質。

9. (補正後) 二次電池用正極活物質の原料粉末を所望の比率で混合し、この混合物を焼成して粉体状の正極活物質を製造するにあたり、

前記粉体状正極活物質を構成する粒子の粒径または密度に基づく抵抗力の差を利用して、前記粉体状正極活物質の平均粒径に対して粒径が250%以上の粗大粒子、および前記粉体状正極活物質の平均密度に対して密度が120%以上の高密度粒子が同時に取り除かれるように、前記粉体状正極活物質から粗大粒子と高密度粒子を同時に分離除去する工程を実施することを特徴とする二次電池用正極活物質の製造方法。

10. (削除)

11. 請求項9記載の二次電池用正極活物質の製造方法において、

前記正極活物質の凝集体、前記正極活物質と他材料との結合体および



前記正極とセパレータを介して配置された負極と、

前記正極、前記セパレータおよび前記負極を収納する電池容器と、

前記電池容器内に充填された非水電解液と

を具備することを特徴とする非水電解液二次電池。

16. 電子部品の製造工程で生じた廃材または廃電子部品から回収、再生した粉体状の再生電子機能材料であって、

前記粉体の平均粒径に対して粒径が600%以上の粗大粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ前記粉体の平均密度に対して密度が150%以上の高密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であることを特徴とする再生電子機能材料。

17. 請求項16記載の再生電子機能材料において、

さらに、前記粉体の平均粒径に対して粒径が15%以下の微小粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ前記粉体の平均密度に対して密度が50%以下の低密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であることを特徴とする再生電子機能材料。

18. 電子部品の製造工程で生じた廃材または廃電子部品から回収、再生した粉体状の再生電子機能材料であって、

前記粉体の平均粒径に対して粒径が15%以下の微小粒子の含有比率が体積比で1%以下であり、かつ前記粉体の平均密度に対して密度が50%以下の低密度粒子の含有比率が質量比で1000ppm以下であることを特徴とする再生電子機能材料。

19. 請求項16記載の再生電子機能材料において、

前記再生電子機能材料は再生正極活物質または再生蛍光体であることを特徴とする再生電子機能材料。

20. (補正後) 電子部品の製造工程で生じた廃材または廃電子部品から電子機能材料を回収する工程と、前記回収した電子機能材料を精製



して、粉体状の電子機能材料を再生する工程とを有する電子機能材料の再生方法において、

前記回収した電子機能材料を精製する過程で、前記粉体状電子機能材料を構成する粒子の粒径および密度に基づく抵抗力の差を利用して、前記粉体状電子機能材料の平均粒径に対して粒径が 250% 以上の粗大粒子、および前記粉体状電子機能材料の平均密度に対して密度が 120% 以上の高密度粒子が同時に取り除かれるように、前記粉体状電子機能材料から粗大粒子および高密度粒子を同時に分離除去する工程を実施することを特徴とする電子機能材料の再生方法。

2 1. (削除)

2 2. 請求項 2 0 記載の電子機能材料の再生方法において、

前記電子機能材料の凝集体、前記電子機能材料と他材料との結合体および不純物粒子から選ばれる少なくとも 1 種の前記粗大粒子と、粒子状の金属性不純物からなる前記高密度粒子を、前記分離除去工程で同時に前記粉体状電子機能材料から取り除くことを特徴とする電子機能材料の再生方法。

2 3. (補正後) 請求項 2 0 記載の電子機能材料の再生方法において、

前記粗大粒子および前記高密度粒子の分離除去工程を、分級装置を用いて実施することを特徴とする電子機能材料の再生方法。

2 4. 請求項 2 0 記載の電子機能材料の再生方法において、

さらに、前記粉体状電子機能材料の平均粒径に対して粒径が 50% 以下の微小粒子、および前記粉体状電子機能材料の平均密度に対して密度が 75% 以下の低密度粒子を、前記粉体状電子機能材料から同時に取り除くように、前記分離除去工程を実施することを特徴とする電子機能材料の再生方法。





25. 請求項20記載の電子機能材料の再生方法において、

二次電池の製造工程で生じた廃電極または廃二次電池から正極活物質を回収する工程と、前記回収した正極活物質を精製して、粉体状の正極活物質を再生する工程とを有することを特徴とする電子機能材料の再生方法。

26. 請求項20記載の電子機能材料の再生方法において、

電子管の製造工程で生じた余剰の蛍光体スラリーまたは廃電子管から蛍光体を回収する工程と、前記回収した蛍光体を精製して、蛍光体粉末を再生する工程とを有することを特徴とする電子機能材料の再生方法。

27. (補正後) 電子部品の製造工程で生じた廃材または廃電子部品から電子機能材料を回収する工程と、前記回収した電子機能材料を精製して、粉体状の電子機能材料を再生する工程とを有する電子機能材料の再生方法において、

前記回収した電子機能材料を精製する過程で、前記粉体状電子機能材料を構成する粒子の粒径または密度に基づく抵抗力の差を利用して、前記粉体状電子機能材料の平均粒径に対して粒径が50%以下の微小粒子、および前記粉体状電子機能材料の平均密度に対して密度が75%以下の低密度粒子が同時に取り除かれるように、前記粉体状電子機能材料から微小粒子および低密度粒子を同時に分離除去する工程を実施することを特徴とする電子機能材料の再生方法。

28. (削除)

29. 請求項27記載の電子機能材料の再生方法において、

前記微小粒子および前記低密度粒子の分離除去工程を、分級装置を用いて実施することを特徴とする電子機能材料の再生方法。

30. (追加) 請求項12記載の二次電池用正極活物質の製造方法において、



前記分級装置として、強制渦による遠心力と流体抵抗力との釣合いを利用して分級を行う分級ロータを有する遠心力式分級装置を用い、かつ前記分級ロータの回転数と空気流量を調整することにより、前記粗大粒子および前記高密度粒子を同時に分離除去することを特徴とする二次電池用正極活物質の製造方法。

31. (追加) 請求項14記載の非水電解液二次電池において、

前記二次電池は携帯用電子機器に使用されることを特徴とする非水電解液二次電池。

32. (追加) 請求項15記載の非水電解液二次電池において、

前記二次電池は携帯用電子機器に使用されることを特徴とする非水電解液二次電池。

33. (追加) 請求項14記載の非水電解液二次電池を電源として具備することを特徴とする携帯用電子機器。

34. (追加) 請求項15記載の非水電解液二次電池を電源として具備することを特徴とする携帯用電子機器。



ST  
Translation  
10/618576

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference FTY0008-PCT	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/JP00/04007	International filing date (day/month/year) 20 June 2000 (20.06.00)	Priority date (day/month/year) 21 June 1999 (21.06.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC H01M 4/58, 10/40, 10/54		
Applicant KABUSHIKI KAISHA TOSHIBA		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.
2. This REPORT consists of a total of 4 sheets, including this cover sheet.

☒ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of 9 sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☐ Certain defects in the international application
- VIII ☐ Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 18 December 2000 (18.12.00)	Date of completion of this report 28 June 2001 (28.06.2001)
Name and mailing address of the IPEA/JP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.



## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP00/04007

## I. Basis of the report

## 1. With regard to the elements of the international application:\*

- ☐ the international application as originally filed
- ☒ the description:  
pages 1-5,7,8,11-49 as originally filed  
pages \_\_\_\_\_ filed with the demand  
pages 6,9,10 filed with the letter of 28 May 2001 (28.05.2001)
- ☒ the claims:  
pages 1,2,5-8,11-19,22,24-26,29 as originally filed  
pages \_\_\_\_\_ as amended (together with any statement under Article 19  
pages \_\_\_\_\_ filed with the demand  
pages 3,4,9,20,23,27,30-34 filed with the letter of 28 May 2001 (28.05.2001)
- ☒ the drawings:  
pages 1-14 as originally filed  
pages \_\_\_\_\_ filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_ filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the sequence listing part of the description:  
pages \_\_\_\_\_ as originally filed  
pages \_\_\_\_\_ filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_ filed with the letter of \_\_\_\_\_

## 2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

## 3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

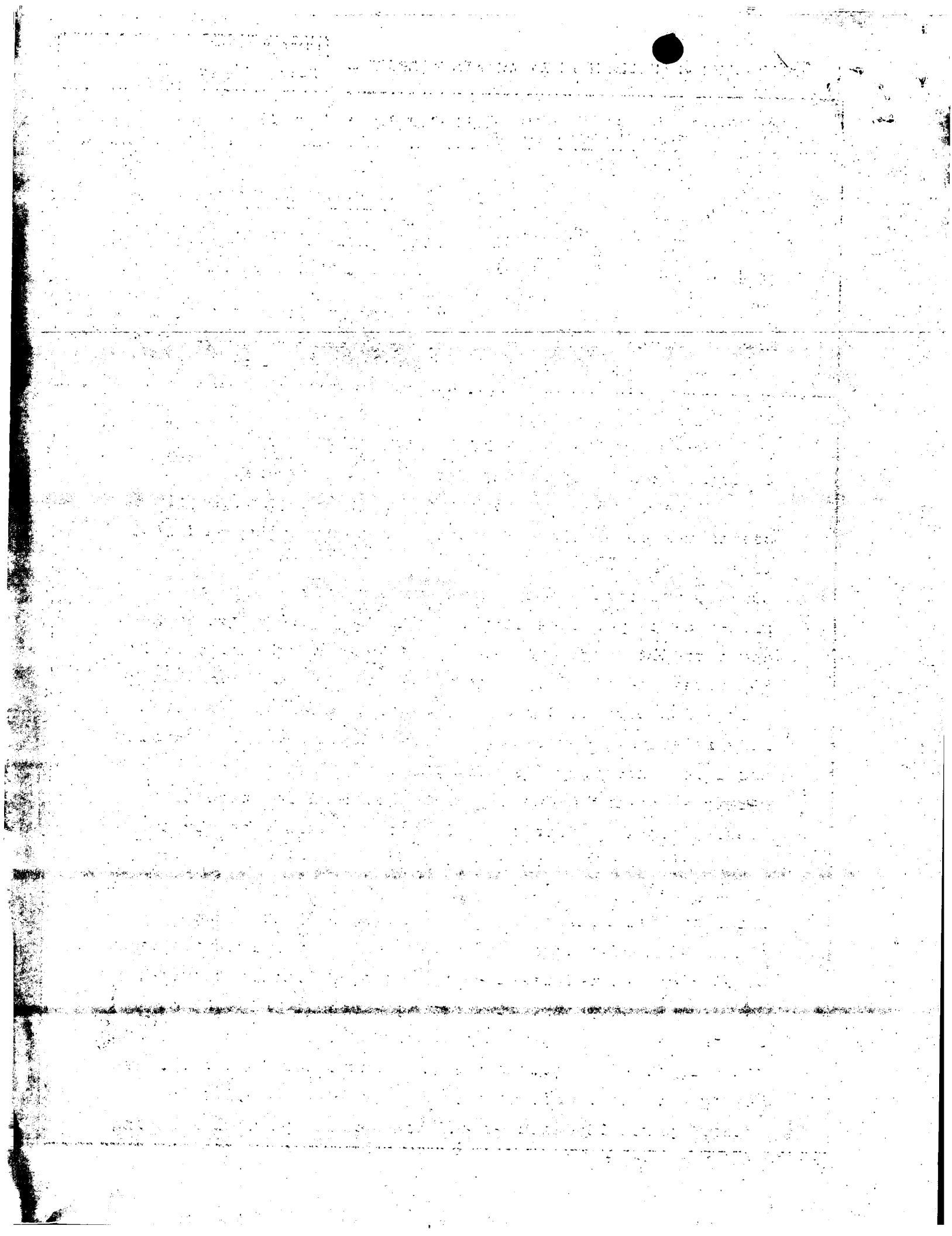
4. ☒ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☒ the claims, Nos. 10,21,28
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).\*\*

\* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

\*\* Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.





# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP 00/04007

## V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

### 1. Statement

Novelty (N)	Claims	1-9, 11-20, 22-27, 29-34	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1-9, 11-20, 22-27, 29-34	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-9, 11-20, 22-27, 29-34	YES
	Claims		NO

### 2. Citations and explanations

The inventions described in Claims 1 to 9, 11 to 20, 22 to 27, and 29 to 34 involve an inventive step.

None of the documents cited in the international search report discloses a coarse particle content of 1% or less by volume for particles having a particle diameter of 600% or greater relative to average particle diameter, high-density particle content by mass of 1,000 ppm or less for particles having a density of 150% or greater relative to average density, fine particle content of 1% or less by volume for particles having a particle diameter of 15% or less relative to average particle diameter, or low-density particle content by mass of 1,000 ppm or less for particles having a density of 50% or less relative to average density. Neither would these features be obvious to a person skilled in the art.

Moreover, none of the documents cited in the international search report discloses the simultaneous elimination of coarse particles having a particle diameter of 250% or greater relative to average particle diameter and high-density particles having a density of 120% or greater relative to average density through separation and removal, or the simultaneous elimination of fine particles having a particle diameter of 50% or less relative to average particle diameter and low-density particles having



**INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT**

International application No.

PCT/JP 00/04007

a density of 75% or less relative to average density through separation and removal. Neither would these features be obvious to a person skilled in the art.

